* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2.**** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1]

It is an organic compound including compound fluorene structure, and this compound fluorene structure is a following formula.:

[Formula 1]

$$\begin{array}{c|c}
R_3 & X_2 \cdot X_1 & R_1 \\
\hline
X_4 & & \\
\hline
& R_4 ;
\end{array}$$

$$X_2$$
 X_3
 X_4
 X_4
 X_4
 X_4
 X_4
 X_4
 X_4

(III)

** -- being expressed by one --: in the above-mentioned formula X_1 , X_2 , X_3 , and X_4 are what is the same or is different independently, And CH or N including the portion to ${\rm contain;} R_1^{},\ R_2^{},\ R_3^{},\ {\rm and}\ R_4^{},\ {\rm Each\ independently\ Hydrogen\ or\ alkyl\ with\ 1-40\ carbon\ atoms,\ the\ alkenyl,\ Alkynyl\ or\ alkyl\ with\ 1-40\ carbon\ atoms,\ the\ alkenyl\ Alkynyl\ or\ alkyl\ with\ 1-40\ carbon\ atoms,\ the\ alkenyl\ Alkynyl\ or\ alkyl\ with\ 1-40\ carbon\ atoms,\ the\ alkenyl\ Alkynyl\ or\ alkyl\ with\ 1-40\ carbon\ atoms,\ the\ alkenyl\ Alkynyl\ or\ alkyl\ alkyl\$ alkoxy; Heteroaryl or replaced type heteroaryl; or F with aryl with 6-60 carbon atoms, replaced type aryl;, or 4-60 carbon atoms, It is a substituent which is CI, Br;, cyano group;, or a nitro group, and;, R_3 , R_4 , or both are the bases which form condensed type an aromatic ring or a complex aromatic ring.

An organic compound including the compound fluorene structure characterized by things.

[Claim 2]

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http://www4.ipdl.inpit.go.jp/Tokujitu/tjite...

An organic compound which has the compound fluorene structure according to claim 1 which is a low molecule, polymer, or its mixture.

[Claim 3]

Formula (IV):

[Formula 2]

the alkyl of no replaced type or replacing type [Y_2 / the inside of the above-mentioned formula, Y_1 , and] respectively independently. It is expressed as the alkenyl, alkynyl, aryl, heteroaryl, or other conjugate groups, what y_1 and y_2 are the integers of 0-6, is the same as for Y_1 and Y_2 , or is different — it is — the organic compound which has the compound fluorene structure according to claim 1 which is a low molecule expressed.

[Claim 4]

Formula (V) or (VI):

[Formula 3]

(Among the above–mentioned formula, X_5 and X_6 are bond groups and independently Y_1 and Y_2 , respectively) Replaced type or no replacing type alkyl, the alkenyl, alkynyl, aryl, or heteroaryl, Or the organic compound which has the compound fluorene structure according to claim 1 which is polymer which is expressed as other conjugate groups, and x, y_1 , and y_2 are the integers of 0–6, and is expressed by the repeating unit of Y_1 and Y_2 being what is the same or is different.

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http://www4.ipdl.inpit.go.jp/Tokujitu/tjite... 3/15/2010

[Claim 5]

Electroluminescent material containing one sort which has the compound fluorene structure according to claim 1, or two sorts or more of organic compounds.

[Claim 6]

A manufacturing method of electroluminescent material including applying as a film one sort which has the compound fluorene structure according to claim 1, or two sorts or more of organic compounds on a substrate which is a manufacturing method of the electroluminescent material according to claim 1, and contains further layer arbitrarily.

[Claim 7]

An electroluminescent device containing one sort or two sorts or more of organic compounds in which it is an electroluminescent device containing one or two active layers or more, and one or more of these the active layers have the compound fluorene structure according to claim 1.

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[Field of the Invention]

[0001]

This invention relates to the organic compound containing compound fluorene structure.

[Background of the Invention]

[0002]

In especially the field of a display element and illumination engineering, the needs for the large area solid-state light source for a series of uses are large. Such demand can fully be fulfilled by neither of the existing art. An electroluminescent device, for example, a light emitting diode, replaces a conventional display element and lighting element. An electroluminescent device is a photoelectric device which luminescence produces according to the current which passes along a device. The physical model of EL is a radiative recombination of an electron and an electron hole. The both sides of organic materials and an inorganic material are used for manufacture of LED. An inorganic material, ZnS/Sn, Ga/Bs, and Ga/As are used for a semiconductor laser, a small area display, a LED lamp, etc. However, an inorganic material includes the fault that it is difficult for processing to obtain big surface area and efficient blue glow difficultly.

[0003]

The organic materials containing both a low molecule and a polymer material provide some advantages about the inorganic material for LED. These advantages have simpler manufacture, are low, and are that production of a full color display is possible in a large area, for example. [of operating voltage] Conjugated polymer (phenylvinylene) (PPV), for example, poly, was first introduced by Burroughes etc. as an EL material in 1990 (Burroughes, J. H. Nature 1990, 347, 539–41). Since then, remarkable progress has been seen and the stability, efficiency, and endurance of polymers LED have been improved (12, Adv. Mater. 2000, 1737 besides Bernius and M.T.). Especially about a large area display, organic LED (OLED) serves as instead of [of the fully established display techniques based on a cathode-ray tube and a liquid crystal display (LCD)]. It is proved lightly [OLED is brighter than LCD, and it is thin, and] that it is a high speed. Furthermore, OLED has a big possibility of there being few necessary operation outputs, and especially providing higher contrast and a large viewing angle (> 165 degrees), and making cheaper the manufacturing cost of polymer system LED (PLED).

[0004]

OLED art is promoting the thorough research activities covering all the fields. Now, the great efforts in material research are concentrating on a new material for a full color flexible display. A full color display needs three fundamental colors, i.e., red, green, and blue, and a flexible substrate needs easy processing of a low temperature and organic materials. A PLED device has a chance of satisfying both requirements. By adjusting chemical structure, can double it, that is, the luminescent color each time, and and solution processing, It is because it makes it possible to carry out the micro patternizing of the detailed multi-colored picture matter by ink jet printing art (J. Mater. Sci.[besides Yang and Y.]: Mater. Elecron., 2000, 11, 89). However, in order to cope with this difficult problem, it can process and organic materials which emit stable and efficient blue glow are still desired highly. Blue glow needs a large energy band. If blue light polymer is used as a main material, it is possible to generate other colors by a downhill grade energy transfer process. For example, green or red EL luminescence can be obtained by doping a blue EL host material with the luminescent material of a little green or red.

[Description of the Invention]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]

[0005]

The purpose of this invention is to provide a new efficient luminescent material.

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

[0006]

Another purpose of this invention is for an energy band gap to provide a large luminescent material. [0007]

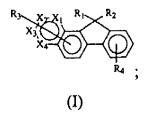
The further purpose of this invention is to provide the material in which processing that it is new for easy processing is possible.

[Means for Solving the Problem]

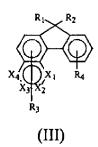
[8000]

These purposes are attained by providing the following organic materials for an organic electroluminescent device. Organic materials are following formula (I), (II), or (III). : [0009]

[Formula 1]



$$X_{1}$$
 X_{2}
 X_{3}
 X_{4}
 X_{4}
 X_{1}
 X_{4}
 X_{1}
 X_{2}
 X_{3}
 X_{4}
 X_{4}
 X_{1}
 X_{4}



[0010]

** — including the compound fluorene structure expressed by one —: in the above—mentioned formula X_1 , X_2 , X_3 , and X_4 are what is the same or is different independently, And CH or N including the portion to contain; R_1 , R_2 , R_3 , and R_4 , Each independently Hydrogen or alkyl with 1–40 carbon atoms, the alkenyl, Alkynyl or alkoxy; Heteroaryl or replaced type heteroaryl; or F with aryl with 6–60 carbon atoms, replaced type aryl;, or 4–60 carbon atoms, It is a substituent which is Cl, Br;, cyano group;, or a nitro group, and;, R_3 , R_4 , or both are the bases which form condensed type an aromatic ring or a complex aromatic ring. [0011]

This invention provides an organic luminescent material which has many advantages. fusibility and a thermal stability and good color excellent in these advantages — a stroke — possibility, high efficiency, and low driver voltage are included.

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

[Best Mode of Carrying Out the Invention]
[0012]

a color with good this invention — a stroke — a very efficient organic luminescent material including a compound fluorene structure provided with possibility, the outstanding fusibility, thermal stability and the raised electron, and/or electron hole transport capacity is provided. A compound fluorene is expressed by formula (I), (II), or (III), X_1 , X_2 , X_3 , and X_4 are what is the same or is different independently, And CH or N including the portion to contain; R_1 , R_2 , R_3 , and R_4 , Each independently Hydrogen or alkyl with 1–40 carbon atoms, the alkenyl, Alkynyl or alkoxy; Heteroaryl or replaced type heteroaryl; or F with aryl with 6–60 carbon atoms, replaced type aryl;, or 4–60 carbon atoms, It is a substituent which is Cl, Br;, cyano group;, or a nitro group, and;, R_3 , R_4 , or both are the bases which form condensed type an aromatic ring or a complex aromatic ring. [0013]

For example, R₁, R₂, R₃, and R₄ independently, Hydrogen, methyl, ethyl, propyl, isopropyl, butyl, isobutyl, t-butyl, pentyl, hexyl, ethylhexyl, heptyl, octyl, Nonyl, decyl, dodecyl, hexadecyl, cyclohexyl, cyclopentyl, Methoxy, ethoxy ** butoxy, hexyloxy one, ethylhexyloxy, They are methoxy ethoxyethyl and methoxy ethyloxy ethoxyethyl, phenyl, tolyl, naphthyl, xylene, anthracene, phenanthrene, phenylmethylenephenyl, benzyl, phenoxy, pyridyl, and thiophenyl. R₃ and R₄ are bases which form condensed type an aromatic ring or a complex aromatic ring, for example, naphthalene, anthracene, perylene, phenanthrene, pyrene, tetracene, pentacene, triphenylene, and benzo[a]pyrene. Preferably R₁, R₂, R₃, and R₄, Hydrogen, t-butyl, hexyl, 2-ethylhexyl, octyl, 3,7-dimethyloctyl, Decyl, heptyl, phenyl, 2-ethylhexyloxy, or 4-methoxypheny; Are diphenylamino and phenyl (4-diphenylamino) and;R₃, Condensed type aromatic anthracene, perylene or pyrene, phenanthrene, or tetracene is formed, and R₄ forms naphthalene or anthracene, and; R₃, R₄, or its both express one or two substituents or more.

[0014]

An organic compound including compound fluorene structure is a low molecule or polymer, and can be used in two sorts or three sorts or more of combination of these. A low molecule contains a dendrimer and polymer contains the high branching architecture.

[0015]

A low molecule including compound fluorene structure is formula (IV). :

[0016]

[Formula 2]

[0017]

It is expressed be alike and Y_1 and Y_2 among the above-mentioned formula, respectively independently, Expressing a replaced type or no replacing type alkyl, the alkenyl, alkynyl, aryl, heteroaryl, or other conjugate groups, y_1 and y_2 are the integers of 0-6, and Y_1 and Y_2 are the same, or differ from each other.

[0018]

Polymer including compound fluorene structure is expressed by the repetitive unit of formula (V) which includes compound fluorene structure as a part of polymer backbone, and the repetitive unit of formula (VI) which contains a composite construction as some polymer side chains.

[0019]

[Formula 3]

[0020]

(Among the above-mentioned formula, X_5 and X_6 are bond groups and independently Y_1 and Y_2 , respectively) Expressing a replaced type or no replacing type alkyl, the alkenyl, alkynyl, aryl, heteroaryl, or other conjugate groups, x, y_1 , and y_2 are the integers of 0-6.

By incorporating Y_1 and a Y_2 unit into a compound including the compound fluorene structure expressed by formula (IV), (V), and (VI), fusibility, an electron, or electron hole transportation mobility can be improved further, or the stroke of the luminescent color can be carried out minutely.

10021

 ${\sf X}_5$ and ${\sf X}_6$ express bond groups independently, respectively, and contain the following group as an example. :

Group I:

 $\rm X_5$ and $\rm X_6$ are the bond groups of carbon-carbon bonding. :

[0022]

[Formula 4]

[0023]

the inside of the above-mentioned formula, and R — hydrogen, alkyl with 1–40 carbon atoms, and alkynyl. alkenyl group; — they are heteroaryl with aryl with 6–60 carbon atoms, replaced type aryl;, or 4–60 carbon atoms, replaced type heteroaryl; or F, Cl, Br;, cyano group;, or a nitro group — it is .

Group II:

 X_5 and X_6 are ether or a thioether bond group. :

[0024]

[Formula 5]

[0025]

It comes out.

Group III:

 \mathbf{X}_{5} and \mathbf{X}_{6} are ester bond groups. :

[0026]

[Formula 6]

[0027]

It comes out.

Group IV:

 ${\rm X}_{\rm 5}$ and ${\rm X}_{\rm 6}$ are anhydride bond groups. :

[0028]

[Formula 7]

[0029]

It comes out.

Group V:

 ${\rm X}_{\rm 5}$ and ${\rm X}_{\rm 6}$ are carbonate bond groups. :

[0030]

[Formula 8]

[0031]

It comes out.

Group VI:

 ${\rm X}_{\rm 5}$ and ${\rm X}_{\rm 6}$ are a sulfone or sulfine bond groups. :

[0032]

[Formula 9]

[0033]

It comes out.

Group VII:

 ${\rm X}_{\rm 5}$ and ${\rm X}_{\rm 6}$ are amine bond groups. :

[0034]

[Formula 10]

[0035]

It is (the above-mentioned inside R of a formula is as having defined above).

Group VIII

 ${\rm X}_{\rm 5}$ and ${\rm X}_{\rm 6}$ are amide bond groups. :

[0036]

[Formula 11]

[0037]

It comes out.

Group IX:

 \boldsymbol{X}_{5} and \boldsymbol{X}_{6} are urea bond groups. :

[0038]

[Formula 12]

[0039]

It comes out.

Group IX:

 X_5 and X_6 are aryl or heteroaryl bond groups. :

[0040]

[Formula 13]

$$\left(-Ar\right)_n$$

[0041]

It is (the inside of the above-mentioned formula and Ar are heteroaryl or replaced type heteroaryl with aryl with 6–60 carbon atoms, replaced type aryl group;, or 4–60 carbon atoms, and;n is the integers 1–6).

[0042]

 ${\rm X}_{\rm 5}$ and ${\rm X}_{\rm 6}$ may be 1 of the above-mentioned groups, or two combination or more.

[0043]

 Y_1 and Y_2 express a replaced type or no replacing type alkyl, the alkenyl, alkynyl, aryl, heteroaryl, or other conjugate groups, and are the same or may differ.

[0044]

Alkyl, the alkenyl, and the number of carbon atoms of an alkynyl group are 1-40.;

A replaced type or no replacing type aryl groups are 6–60 carbon atoms, and contain phenyl, biphenyl, naphthyl, anthracene, a fluorene, phenanthrene, spirophenyl, perylene, or a pyrene group.;

A replaced type or no replacing type heteroaryl groups are 4–60 carbon atoms, Pyridine, a thiophene, pyrrole, bithiophene, a franc, benzofuran, benzimidazole benzooxazol, quinoxaline, phenylquinoline, diphenyl oxadiazole, or carbazole is included.

[0045]

As an example of all above-mentioned substituents, alkyl or an alkoxy group with 1-40 carbon atoms, Heteroaryl with aryl with 6-60 carbon atoms, replaced type aryl;, or 4-60 carbon atoms, replaced type heteroaryl; or F, Cl, Br;, cyano group;, or a nitro group is mentioned.

0046

 ${\sf Y}_1$ and ${\sf Y}_2$ can be divided into the following group.

Group I:

Y₁ and Y₂ are formula (VII)s.:

-W-

(VII)

(Among the above-mentioned formula, the numbers of carbon atoms of W are 1-28, and may contain O, N, S, F, Cl, Br, or Si atom)

They are ** alkyl, alkenyl, or an alkynyl group.

[0047]

The following structure is an example of formula (VII). :

[0048]

[Formula 14]

-(CH₂)m-

(mは1~6の整数である)

[0049]

[Formula 15]

(qは0~12の整数である)

[0050]

[Formula 16]

(X₇はC, O, N又はS原子である)

[0051]

[Formula 17]

[0052]

It constitutes.

Group II:

 Y_5 and Y_6 are formula (VIII)s. :

[0053]

[Formula 18]

$$---(Ar_1)--Z-(Ar_2)---$$

(VIII)

[0054]

(The inside of the above-mentioned formula, Ar_1 , and Ar_2 are heteroaryl with a replaced type with 6-60 carbon atoms, no replacing type aryl group;, or 4-60 carbon atoms, and are;.)

two aryls which Z is bivalence bond groups with 0-40 carbon atoms, and were combined by the bond groups Z which can contain N, Si, O, Cl, F, Br, or S atom — or it passes and is a terrorism aryl group.

The following structure is an example of formula (VIII). :

[0056]

[Formula 19]

[0057]

(Among the above-mentioned formula, R is as having defined above and can express such two or more substituents);

[0058]

[Formula 20]

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ \end{array}$$

(X₈はC又はSiである)

$$\begin{array}{c}
R \\
R_1 \\
N
\end{array}$$

[0059]

[Formula 21]

[0060] [Formula 22]

$$R_1$$

$$R_1$$

$$R_{1}$$
 R_{2}
 R_{2}
 R_{3}

[0061] [Formula 23]

$$\begin{bmatrix} R_1 & R_2 \\ R_2 & R_2 \end{bmatrix}$$

(pとrは1~4の整数である)

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & R_2 \\
R_2 & R_2
\end{array}$$

$$\begin{array}{c|c} R_1 & R_2 \\ \hline \\ R_2 & R_2 \end{array}$$

[0062]

 R_5 and R_6 — each — independently — hydrogen or alkyl with 1–40 carbon atoms, they are heteroaryl with aryl with the alkenyl, alkynyl, or 6–60 alkoxy; carbon atoms, replaced type aryl;, or 4–60 carbon atoms, replaced type heteroaryl; or F, Cl, Br;, cyano group;, or a nitro group —; — or [0063]

[Formula 24]

$$R_{5}$$
 R_{6}
 R_{6}
 R_{6}
 R_{6}

 $(X_s$ はOもしくはS原子、又はN-Rである)

[0064]

It constitutes.

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran_web_cgi_ejje?atw_u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Group III:

 Y_1 and Y_2 are formula (IX)s.:

-Ar-

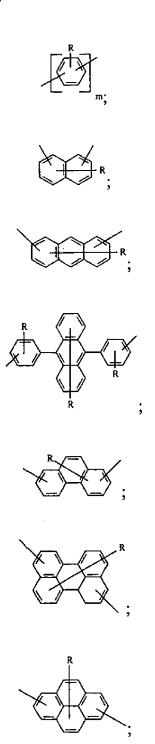
(IX)

It is the aryl or the heteroaryl group of (the inside of the above-mentioned formula and Ar are a replaced type with a replaced type with 6-60 carbon atoms, no replacing type aryl group;, or 4-60 carbon atoms or no replacing type heteroaryl, one or more or two N or more, S, or O atom). [0065]

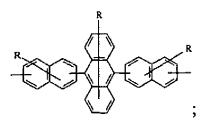
The following structure is an example of formula (IX). :

[0066]

[Formula 25]



[0067] [Formula 26]



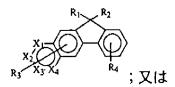
 $(X_{10}$ はO原子又は2個のシアノ基である)

[0068] [Formula 27]

$$\begin{array}{c}
R_{5} \\
R_{7} \\
R_{8} \\
R_{8} \\
R_{9} \\
R_{1} \\
R_{1} \\
R_{1} \\
R_{2} \\
R_{4} \\
R_{4} \\
R_{1} \\
R_{2} \\
R_{4} \\
R_{4} \\
R_{5} \\
R_{7} \\
R_{1} \\
R_{1} \\
R_{2} \\
R_{4} \\
R_{4} \\
R_{5} \\
R_{1} \\
R_{1} \\
R_{2} \\
R_{4} \\
R_{4} \\
R_{5} \\
R_{1} \\
R_{2} \\
R_{4} \\
R_{4} \\
R_{5} \\
R_{5} \\
R_{1} \\
R_{1} \\
R_{2} \\
R_{4} \\
R_{5} \\
R_{5} \\
R_{1} \\
R_{2} \\
R_{4} \\
R_{5} \\
R_{5} \\
R_{5} \\
R_{7} \\
R_{1} \\
R_{2} \\
R_{4} \\
R_{5} \\$$

[0069]

[Formula 28]



$$X_4$$
 X_3
 X_2
 X_3
 X_2

[0070]

It constitutes.

[0071]

 Y_1 and Y_2 may be 1 of the above-mentioned groups, or two combination or more.

[0072]

The following structure constitutes the example of the desirable compound which satisfies the requirements for this invention. :

[0073]

[Formula 29]

$$R_7$$
 R_2 R_7

[0074]

Compound 1 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = H$

Compound 2 $R_1 = R_2 = n$ -octyl, $R_7 = H$

Compound 3 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = n$ -hexyl

Compound 4 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = H

[0075]

[Formula 30]

$$R_1$$
 R_2 R_7

[0076] Compound 5 $R_1 = R_2 = n$ -octyl, $R_7 = h$ exyl Compound 6 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = H$ Compound 7 $R_1 = n$ -hexyl, $R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = H$ [0077] [Formula 31]

$$R_1$$
 R_2
 R_7
 R_7
 R_7

[0078]

Compound 8 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = t-butyl Compound 9 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = 2-ethylhexyl Compound 10 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = 2-ethylhexyl Compound 11 R_1 = R_2 = R_7 = 2-ethylhexyl

[0079]

[Formula 32]

$$R_1$$
 R_2
 R_2
 R_3

[0800]

Compound 12 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = t-butyl

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran_web_cgi_ejje?atw_u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Compound 13 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_7 = 2-ethylhexyl

Compound 14 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy

Compound 15 $R_1 = R_2 = R_7 = 2$ -ethylhexyl

Compound 16 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = H$

[0081]

[Formula 33]

$$R_7$$
 R_1
 R_2
 R_7

[0082]

Compound 17 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = t-butyl

Compound 18 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_7 = 2-ethylhexyl

Compound 19 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy

Compound 20 $R_1 = R_2 = R_7 = 2$ -ethylhexyl

Compound 21 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = n$ -octyl

[0083]

[Formula 34]

$$R_1$$
 R_2 N

[0084]

Compound 22 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl

Compound 23 $R_1 = R_2 = R_7 = n-hexyl$

Compound 24 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl

Compound 25 $R_1 = R_2 = phenyl$

Compound 26 $R_1 = R_2 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl

[0085]

[Formula 35]

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & \\ & & & \\ & & & \\ & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ &$$

[0086]

Compound 27 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl

Compound 28 $R_1 = R_2 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl

Compound 29 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-octyl

[0087]

[Formula 36]

$$\begin{array}{c|c} R_{1} & R_{2} & R_{8} & R_{7} \\ \hline \\ R_{8} & R_{8} & R_{8} & R_{7} \\ \hline \end{array}$$

[8800]

Compound 30 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 31 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-hexyI$

Compound 32 $R_1 = R_7 = n-hexyl$, $R_2 = 2-ethylhexyl$, $R_8 = H$

[0089]

[Formula 37]

$$R_7$$
 R_1
 R_2
 R_8
 R_8
 R_8
 R_8
 R_8
 R_1
 R_2
 R_1
 R_2
 R_3

[0090]

Compound 33 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 34 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-hexyl$

Compound 35 $R_1 = R_7 = n$ -hexyl, $R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_8 = H$

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Compound 36 $R_1 = R_2 = R_7 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl, $R_8 = n-hexyl$ [0091] [Formula 38]

$$R_7$$
 R_1
 R_2
 R_7

Compound 37 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = t-butyl

Compound 38 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_7 = 2-ethylhexyl

Compound 39 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy

Compound 40 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl

Compound 41 R_1 = H, R_2 = 4-n-decylphenyl, R_7 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl

[0093]

[Formula 39]

$$R_1$$
 R_2
 R_1
 R_2
 R_7

[0094]

Compound 42 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_7 = 2-ethylhexyl

Compound 43 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy

Compound 44 R_1 = H, R_2 = 4-n-decylphenyl, R_7 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl

Compound 44 R_1 = H, R_2 = 4-n-decylphenyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy

[0095]

[Formula 40]

[0096]

Compound 45 $R_1 = R_3 = n - \text{hexyl}$, $R_2 = R_8 = 2 - \text{ethylhexyl}$

Compound 46 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy, R_8 = diphenylamino

Compound 47 R_1 = H, R_2 = 4-n-decylphenyl, R_7 = R_8 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl

Compound 48 R_1 = H, R_2 = 4-n-decylphenyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy, R_8 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl

[0097]

[Formula 41]

$$R_1$$
, R_2 , R_7 , R_8

[0098]

Compound 49 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 2-ethylhexyl$

Compound 50 $R_1 = R_7 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_2 = R_8 = H$

Compound 51 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 4-n$ -decylphenyl

[0099]

[Formula 42]

$$\begin{array}{c|c} R_1 & R_2 \\ \hline \\ R_7 & R_8 \end{array}$$

[0100]

Compound 52 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 2-ethylhexyl$

Compound 53 $R_1 = R_7 = 4 - (bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl, $R_2 = R_8 = H$

Compound 54 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 4-n$ -decylphenyl

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Compound 55 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n$ -octyl [0101] [Formula 43]

$$R_{\theta}$$
 R_{1}
 R_{2}
 R_{7}

[0102]

Compound 56 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 2-ethylhexyl$ Compound 57 $R_1 = R_2 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl, $R_7 = R_8 = H$ Compound 58 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 4-n-decylphenyl$ [0103] [Formula 44]

$$\begin{array}{c} R_{1} \\ R_{7} \\ R_{8} \end{array}$$

[0104]

Compound 59 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = H$, $R_8 = 2-ethylhexyl$ Compound 60 $R_1 = R_2 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl, $R_7 = H$, $R_8 = n-hexyloxy$ Compound 61 $R_1 = R_2 = R_8 = 4-n-decylphenyl$, $R_7 = CN$ [0105] [Formula 45]

[0106]

Compound 62 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = H$, $R_8 = 2-ethylhexyl$

Compound 63 $R_1 = R_2 = R_8 = 4 - (bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl, $R_7 = H$

Compound 64 $R_1 = R_2 = 4-n$ -decylphenyl, $R_7 = CN$, $R_8 = n$ -hexyloxy

[0107]

[Formula 46]

$$R_8$$
 R_1
 R_2
 R_7
 R_7
 R_7
 R_7

[0108]

Compound 65 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = 2-ethylhexyl$, $R_8 = t-butyl$

Compound 66 $R_1 = R_2 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_7 = 4$ -t-buthylphenyl, $R_8 = t$ -butyl

Compound 67 R_1 = hexyl, R_2 = 4-n-decylphenyl, R_7 = 2-ethylhexyl, R_8 = phenyl

[0109]

[Formula 47]

[0110]

Compound 68 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = 2-ethylhexyl$, $R_8 = CN$

Compound 69 $R_1 = R_2 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_7 =$ phenyl, $R_8 =$ H

Compound 70 R_1 = hexyl, R_2 = 4-n-decylphenyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy, R_8 = phenyl

[0111]

[Formula 48]

$$R_1$$
 R_2 R_3 R_4 R_5

[0112]

Compound 71 $R_1 = R_7 = n-hexyl$, $R_2 = R_8 = 2-ethylhexyl$

Compound 72 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy, R_8 = diphenylamino

Compound 73 R_1 = H, R_2 = 4-n-decylphenyl, R_7 = R_8 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl

Compound 74 R_1 = H, R_2 = R_8 = 4-n-decylphenyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy

[0113]

[Formula 49]

$$R_1$$
 R_2 R_3

[0114]

Compound 71 $R_1 = R_3 = n-hexyl$, $R_2 = R_4 = 2-ethylhexyl$

Compound 72 R_1 = n-hexyl, R_2 = 2-ethylhexyl, R_3 = R_4 = 2-ethylhexyloxy

Compound 73 $R_1 = R_2 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_3 = R_4 = 4$ - (t-buthylphenyl)

Compound 74 R_1 = H, R_2 = 4-n-decylphenyl, R_3 = 2-ethylhexyloxy, R_4 = 2-ethylhexyl

[0115]

[Formula 50]

$$R_1$$
 R_2
 R_8

[0116]

Compound 75 $R_1 = R_7 = n-hexyl$, $R_2 = R_8 = 2-ethylhexyl$

Compound 76 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 77 $R_1 = R_2 = 4 - (bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl, $R_7 = R_8 = H$

Compound 78 R_1 = H, R_2 = 4-n-decylphenyl, R_7 = R_8 = 2-ethylhexyloxy

[0117]

[Formula 51]

$$R_1$$
 R_2
 R_R

Compound 79 $R_1 = R_7 = n-hexyl$, $R_2 = R_8 = 2-ethylhexyl$

Compound 80 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyloxy

Compound 81 $R_1 = R_2 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_7 = R_8 = t$ -butyl

[0119]

[Formula 52]

$$R_7$$
 R_1 R_2 R_8 R_8

Compound 82 $R_1 = R_2 = 4 - (bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl, $R_7 = R_8 = 2 - butyl$

Compound 83 R_1 = H, R_2 = 4-octylphenyl, R_7 = R_8 = 2-ethylhexyl

Compound 84 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = 2$ -ethylhexyloxy, $R_8 = 3,7$ -dimethyloctyl

[0121]

[Formula 53]

[0122]

Compound 85 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl

Compound 86 R_1 = 3,7-dimethyloctyl, R_2 = 4-octylphenyl

Compound 87 $R_1 = R_2 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl

[0123]

[Formula 54]

$$R_7$$
 R_2
 R_7
 R_7
 R_8

[0124]

Compound 88 $R_1 = R_2 = 4 - (bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl, $R_7 = R_8 = n - hexyl$

Compound 89 R_1 = H, R_2 = 4-octylphenyl, R_7 = R_8 = 2-ethylhexyloxy

Compound 90 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = 4$ -t-octylphenyl, $R_8 = 3,7$ -dimethyloctyl

[0125]

[Formula 55]

$$R_1$$
 R_2 R_2 R_7 R_7 R_8

[0126]

Compound 91 $R_1 = R_2 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_7 = n$ -hexyl, $R_8 = t$ -butyl

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran_web_cgi_ejje?atw_u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Compound 92 R₁= H, R₂= 4-octylphenyl, R₇= R₈= 2-ethylhexyl Compound 93 R₁= R₂= 2-ethylhexyl, R₇= 3,7-dimethyl octyloxy, R₈= n-hexyl [0127] [Formula 56]

$$R_8$$
 R_1 R_2 R_7 R_7 R_7 R_7

[0128] Compound 94
$$R_1 = R_2 = 4$$
-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_7 = n$ -hexyl, $R_8 = phenyl$ Compound 95 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = 3.7$ -dimethyl octyloxy, $R_8 = n$ -hexyl Compound 96 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = 3.7$ -dimethyl octyloxy, $R_8 = n$ -hexyl [0129] [Formula 57]

[0130] Compound 97
$$R_1 = R_2 = 4$$
-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl Compound 98 R_1 = ethyl = R_2 [0131] [Formula 58]

$$R_7$$
 R_1
 R_2
 R_8
 R_8

[0132] Compound 99
$$R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$$
-ethylhexyl

Compound 100 R₁= H, R₂= R₇= 4-octylphenyl, R₈= 2-ethylhexyloxy Compound 101 R₁= R₂= 2-ethylhexyl, R₇= t-butyl, R₈ = diphenylamino Compound 102 R₁= R₂= 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R₇= H, R₈ = phenyl [0133] [Formula 59]

$$R_1$$
, R_2 , R_7

[0134] Compound 103 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = R_8 = dimethylamino$ Compound 104 $R_1 = n$ -hexyl, $R_2 = 4$ -octylphenyl, $R_7 = t$ -butyl Compound 105 $R_1 = R_2 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_7 = H$ [0135] [Formula 60]

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & R_2 & R_7 \\
\hline
R_8 & R_8
\end{array}$$

[0136] Compound 106 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = R_8 = phenyl$ Compound 107 $R_1 = H$, $R_2 = R_7 = 4$ -octylphenyl, $R_8 = 2$ -ethylhexyloxy Compound 108 $R_1 = R_2 = n$ -octyl, $R_7 = diphenylamino$, $R_8 = t$ -butyl Compound 109 $R_1 = R_2 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_7 = t$ -butyl, $R_8 = phenyl$ [0137] [Formula 61]

[0138]

Compound 110 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 111 $R_1 = R_2 = R_8 = n-hexyl$, $R_7 = phenyl$

Compound 112 $R_1 = R_7 = n$ -hexyl, $R_2 = 4$ -(diphenylamino) phenyl, $R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 113 R_1 = H, R_2 = 4-decylphenyl, R_7 = n-hexyl, R_8 = 3,7-dimethyloctyl

[0139]

[Formula 62]

$$R_1$$
 R_2 R_7 R_8

[0140]

Compound 114 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = R_8 = phenyl$

Compound 115 $R_1 = R_7 = H$, $R_2 = R_8 = 4$ -octylphenyl

Compound 116 $R_1 = R_7 = n$ -octyl, $R_7 = 4$ -(diphenylamino) phenyl, $R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 117 $R_1 = R_2 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_7 = n$ -decyl, $R_8 = 3.7$ -dimethyloctyl

[0141]

[Formula 63]

$$\begin{array}{c|c} & R_1 & R_2 \\ \hline \\ & R_8 & R_7 \end{array}$$

[0142]

Compound 118 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl Compound 119 $R_1 = R_7 = n$ -hexyl, $R_2 = R_8 = 4$ -octylphenyl Compound 120 $R_1 = R_2 = n$ -octyl, $R_7 = 4$ -(diphenylamino) phenyl, $R_8 = 2$ -ethylhexyl [0143] [Formula 64]

$$R_1$$
 R_2 R_3 R_3 R_3 R_3

[0144] Compound 121 $R_1 = R_2 = R_7 = 2$ -ethylhexyl, $R_8 = 4$ -hexylphenyl Compound 122 $R_1 = H$, $R_2 = R_7 = 3$,7-dimethyloctyl, $R_8 = 2$ -ethylhexyl Compound 123 $R_1 = R_7 = 4$ -(diphenylamino) phenyl, $R_2 = n$ -octyl, $R_8 = n$ -hexyl Compound 124 $R_1 = R_2 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_7 = n$ -decyl, $R_8 = H$ [0145] [Formula 65]

[0146]

Compound 125 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2 - \text{ethylhexyl}$

Compound 126 R_1 = H, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = (4-diphenylamino) phenyl

Compound 127 $R_1 = R_7 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_2 = R_8 = n$ -decyl

[0147]

[Formula 66]

[0148]

Compound 128 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl, m = 10, and q = 6

Compound 129 R_1 = H, R_2 = 4-decylphenyl, R_7 = R_8 =3,7-dimethyloctyl, m = 2, and q = 5

Compound 130 $R_1 = R_7 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_2 = R_8 = n$ -decyl, and m = q = 1

[0149]

[Formula 67]

[0150]

Compound 131 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = n$ -hexyloxy, $R_8 =$ ethyl, and m = 10

Compound 132 $R_1 = R_2 = 4$ -decylphenyl, $R_7 = H$, $R_8 = n$ -hexyl, and m = 1

Compound 133 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = H$, and m = 11

Compound 134 $R_1 = R_2 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_3 =$ diphenylamino, $R_4 =$ H, and m = 17

[0151]

[Formula 68]

$$R_1$$
 R_2
 CH_2) $m-O$
 CN
 CN
 CN
 CN

[0152]

Compound 135 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ —ethylhexyl and m = 3

Compound 136 R_1 = H, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = phenyl (4-diphenylamino), and m = 2

Compound 137 $R_1 = R_7 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_2 = R_8 = n$ -decyl, and m = 3

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran_web_cgi_ejje?atw_u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

[0153] [Formula 69]

$$R_1$$
 R_2
 R_3
 R_4

[0154] Compound 137 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl Compound 138 $R_1 = H$, $R_2 = R_7 = 3$,7-dimethyloctyl, $R_8 = p$ henyl (4-diphenylamino) Compound 139 $R_1 = 4$ -(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, $R_2 = n$ -decyl, $R_7 = t$ -butyl, $R_8 = n$ -hexyloxy [0155] [Formula 70]

$$R_2$$
 R_1
 R_2
 R_3
 R_4
 R_8

```
[0156]
```

Compound 140 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 141 R_1 = H, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = phenyl (4-diphenylamino)

Compound 142 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = t-butyl, R_8 = n-hexyloxy

Compound 143 R_1 = 4-(N-carbazole) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy, R_8 = n-hexyl

Compound 144 R_1 = 4-(n-decyl) phenyl, R_2 = R_7 = R_8 = H

[0157]

[Formula 71]

[0158]

Compound 145 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = n$ -hexyloxy, $R_8 =$ ethyl, and m = 10

Compound 146 $R_1 = R_2 = 4$ -decylphenyl, $R_7 = H$, $R_8 = n$ -hexyl, and m = 1

Compound 147 $R_1 = R_7 = R_8 = H$, $R_2 = 4$ -decylphenyl, and m = 11

Compound 148 $R_1 = R_2 = 4 - (bis(4 - methylphenyl)amino)$ phenyl, $R_7 = diphenylamino$, $R_8 = H$, and m = 17

[0159]

[Formula 72]

[0160]

Compound 149 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = n$ -hexyloxy, $R_8 =$ ethyl, X = C

Compound 150 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = n$ -hexyl, $R_8 = CF_3$, X = C

Compound 151 $R_1 = R_7 = 4$ -decylphenyl, $R_2 = H$, $R_8 = n$ -butyl, X = Si

Compound 152 R_1 = H, R_2 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_7 = diphenylamino, R_8 =n-hexyl, X = Si

[0161]

[Formula 73]

[0162]

Compound 153 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 154 R_1 = H, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = phenyl (4-diphenylamino)

Compound 155 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = t-butyl, R_8 = n-hexyloxy

Compound 156 R_1 = 4-(N-carbazole) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = 2-ethylhexyloxy, R_8 = n-hexyl

[0163]

[Formula 74]

$$\begin{array}{c|c}
R_1, R_2 & R_7 \\
\hline
R_8 & R_7 \\
\hline
R_8 & R_7 \\
\hline
R_9 & R_9 \\
\hline
R_$$

[0164]

Compound 157 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyloxy

Compound 158 R_1 = H, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = phenyl (4-diphenylamino)

Compound 159 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = t-butyl, R_8 = n-hexyloxy

[0165]

[Formula 75]

[0166]

Compound 160 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 2-ethylhexyloxy$

Compound 161 R_1 = H, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = phenyl (4-diphenylamino)

Compound 162 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = t-butyl, R_8 = n-hexyloxy

[0167]

[Formula 76]

[0168]

Compound 163 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 2-ethylhexyloxy$

Compound 164 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = phenyl (4-diphenylamino)

Compound 165 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = H$

Compound 166 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = t-butyl, R_8 = n-hexyloxy

Compound 167 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = n-octyl$

Compound 168 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = n-hexyloxy$

[0169]

[Formula 77]

$$\begin{array}{c|c} R_1 & R_2 & R_7 & R_8 \\ \hline \\ R_7 & R_8 & R_8 \end{array}$$

[0170]

Compound 169 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 2-ethylhexyl$

Compound 170 R_1 = H, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = phenyl (4-diphenylamino)

Compound 171 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = R_8 = n-hexyl

[0171]

[Formula 78]

[0172]

Compound 172 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 4-octylphenyl$

Compound 173 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = phenyl (4-diphenylamino)

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran_web_cgi_ejje?atw_u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Compound 174 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-hexyl$

Compound 175 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = R_8 = n-octyl

[0173]

[Formula 79]

[0174]

Compound 176 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = n-hexyloxy$, $R_8 = 2-ethylhexyl$

Compound 177 $R_1 = R_7 = n-hexyl$, $R_2 = 3.7-dimethyloctyl$, $R_8 = phenyl$ (4-diphenylamino)

Compound 178 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-hexyl$

Compound 179 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = methyl, R_8 = n-hexyl

[0175]

[Formula 80]

$$\begin{array}{c|c} R_8 & R_7 \\ \hline R_8 & R_{10} \\ \hline \end{array}$$

[0176]

Compound 180 $R_1 = R_2 = R_9 = R_{10} = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = n-ethylhexyloxy$

Compound 181 $R_1 = R_9 = n$ -hexyl, $R_2 = R_7 = R_{10} = 3.7$ -dimethyloctyl, $R_8 = phenyl$ (4-diphenylamino)

Compound 182 $R_1 = R_2 = R_9 = R_{10} = n-hexyl$, $R_7 = n-hexyloxy$, $R_8 = H$

Compound 183 $R_1 = R_9 = 4 - (bis(4-methylphenyl)amino)$ phenyl, $R_2 = R_{10} = n - decyl$, $R_7 = t - butyl$, $R_8 = n - hexyloxy$

Compound 184 $R_1 = R_2 = R_9 = R_{10} = n-hexyl$, $R_7 = n-hexyloxy$, $R_8 = n-octyl$

Compound 185 $R_1 = R_2 = R_9 = R_{10} = n-hexyl, R_7 = R_8 = n-hexyloxy$

[0177]

[Formula 81]

[0178]

Compound 186 $R_1 = R_2 = R_9 = R_{10} = n-hexyl$, $R_7 = n-hexyloxy$, $R_8 = H$

Compound 187 $R_1 = R_2 = R_9 = R_{10} = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = phenyl$ (4-diphenylamino)

Compound 188 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = R_9 = R_{10} = n-hexyl$

Compound 189 $R_1 = R_9 = 4$ -decylphenyl, $R_2 = R_{10} = H$, $R_7 = R_8 = n$ -hexyloxy

[0179]

[Formula 82]

[0180]

Compound 190 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-hexyl$

Compound 191 R_1 = H, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = phenyl (4-diphenylamino)

Compound 192 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = R_8 = n-hexyl

[0181]

[Formula 83]

$$\begin{array}{c|c} R_1 & R_2 \\ \hline \\ R_7 & \end{array}$$

[0182]

Compound 193 $R_1 = R_2 = n-\text{hexyl}$, $R_7 = R_8 = n-\text{butyl}$

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran_web_cgi_ejje?atw_u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Compound 194 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = R_8 = phenyl (4-diphenylamino)$

Compound 195 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-hexyl$

Compound 196 R_1 = 4-decylphenyl, R_2 = H, R_7 = R_8 = CF_3

[0183]

[Formula 84]

[0184]

Compound 197 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7R_8 = 2-ethylhexyloxy$

Compound 198 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = H$

Compound 199 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = R_8 = H

Compound 200 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = phenyl (4-diphenylamino)

Compound 201 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = R_8 = n-hexyloxy

Compound 202 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = t-butyl, R_8 = n-hexyloxy

[0185]

[Formula 85]

$$\begin{array}{c|c} R_1 & R_2 \\ \hline \\ R_8 & R_7 \end{array}$$

[0186]

Compound 203 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 2-ethylhexyl$

Compound 204 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = R_8 = H

Compound 205 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_8 = 3,7-dimethyloctyl, R_7 = phenyl (4-diphenylamino)

Compound 206 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = t-butyl$, $R_8 = H$

Compound 207 R_1 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl, R_2 = n-decyl, R_7 = n-butyl, R_8 = n-hexyloxy

[0187]

[Formula 86]

$$R_1$$
 R_2 R_3

[0188]

Compound 208 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 2-ethylhexyloxy$

Compound 209 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = R_8 = n-butyl

Compound 210 R_1 = n-hexyl, R_2 = phenyl (4-diphenylamino), R_7 = H, R_8 = 3,7-dimethyloctyl

Compound 211 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 4-(bis(4-methylphenyl)amino) phenyl$

[0189]

[Formula 87]

$$\begin{array}{c|c} R_1 & R_2 & R_3 \\ \hline \end{array}$$

[0190]

Compound 212 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 213 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = 4-t-buthylphenyl, R_8 = H

Compound 214 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_8 = 3,7-dimethyloctyl, R_7 = phenyl (4-diphenylamino)

Compound 215 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = 2-ethylhexyl$, $R_8 = H$

[0191]

[Formula 88]

[0192]

Compound 216 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Compound 217 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = 4-t-buthylphenyl, R_8 = H Compound 218 R_1 = n-hexyl, R_2 = 3,7-dimethyloctyl, R_7 = phenyl (4-diphenylamino), R_8 = n-hexyloxy [0193] [Formula 89]

$$R_1$$
 R_2 R_8 R_8

Compound 219 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 2-ethylhexyl$ Compound 220 $R_1 = 2-ethylhexyl$, $R_2 = n-hexyl$, $R_7 = 4-t-buthylphenyl$, $R_8 = n-hexyloxy$ Compound 218 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = 2-ethylhexyl$, $R_8 = H$ [0195] [Formula 90]

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ \hline R_1 & R_2 & & \\ \hline R_8 & & & \\ \hline R_7 & & \\ \hline \end{array}$$

[0196]

Compound 222 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = n-butyl$

Compound 223 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = R_8 = phenyl (4-diphenylamino)$

Compound 224 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-hexyl$

Compound 225 R_1 = 4-decylphenyl, R_2 = H, R_7 = R_8 = CF_3

[0197]

[Formula 91]

$$\begin{array}{c|c} R_1 & R_2 & R_8 \\ \hline \\ R_7 & R_8 \\ \hline \\ R_7 & R_8 \\ \hline \end{array}$$

[0198]

Compound 226 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = n-butyl$, $R_8 = H$

Compound 227 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = 4$ -t-buthylphenyl, $R_8 = CN$

Compound 228 R_1 = 4-decylphenyl, R_2 = H, R_7 = CF_3 , R_8 = phenyl

[0199]

[Formula 92]

[0200]

Compound 229 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = phenyl$, $R_8 = R_9 = 2-ethylhexyl$

Compound 230 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = R_8 = H, R_9 = 4-t-buthylphenyl

Compound 231 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = H$, $R_8 = methoxy$, $R_9 = 3,7-dimethyl octyloxy$

Compound 232 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_8 = 3,7-dimethyloctyl, R_7 = H, R_9 = phenyl (4-diphenylamino)

[0201]

[Formula 93]

$$R_1$$
 R_2 R_7 R_9 R_7

[0202]

Compound 233 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = CN, R_8 = R_9 = 4-t-buthylphenyl

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Compound 234 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = H$, $R_9 = 2-ethylhexyl$

Compound 235 R_1 = 4-decylphenyl, R_2 = R_8 = 3,7-dimethyloctyl, R_7 = H, R_9 = phenyl (4-diphenylamino)

[0203]

[Formula 94]

$$R_{g}$$
 R_{g}
 R_{g}
 R_{g}
 R_{g}

[0204]

Compound 236 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = CN, R_8 = R_9 = 4-t-buthylphenyl

Compound 237 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = R_8 = H$, $R_9 = 2$ -ethylhexyl

Compound 238 R_1 = 4-decylphenyl, R_2 = R_8 = 3,7-dimethyloctyl, R_7 = H, R_9 = phenyl (4-diphenylamino)

[0205]

[Formula 95]

$$R_8$$
 N_1
 N_2
 N_2
 N_2
 N_2
 N_3
 N_4
 N_2
 N_3
 N_4
 N_5
 N_5
 N_5

[0206]

Compound 239 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = t-butyl, R_8 = H

Compound 240 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = phenyl$, $R_8 = CN$

Compound 241 R_1 = 4-decylphenyl, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = methyl

[0207]

[Formula 96]

[0208]

Compound 242 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 243 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = 4$ -decylphenyl, $R_8 = 2$ -ethylhexyloxy

Compound 244 R_1 = phenyl (4-diaminophenyl), R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = H

[0209]

[Formula 97]

[0210]

Compound 245 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = t-butyl, R_8 = H

Compound 246 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = n-octyloxy$, $R_8 = CN$

Compound 247 R_1 = 4-decylphenyl, R_2 = R_7 = 3,7-dimethyloctyl, R_8 = CN

[0211]

[Formula 98]

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ \hline \\ & & \\ \end{array}$$

[0212]

Compound 248 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = t-butyl

Compound 249 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = phenyl$

Compound 250 R_1 = 4-decylphenyl, R_2 = n-octyl, R_7 = CN

Compound 251 R_1 = 4-(diphenylamino) phenyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = n-hexyloxy

[0213]

[Formula 99]

$$R_1$$
 R_2 R_7 R_8

Compound 252 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = R_8 = 4$ -t-buthylphenyl

Compound 253 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-octyl$

Compound 254 $R_1 = R_7 = 4$ -decylphenyl, $R_2 = R_8 = 3.7$ -dimethyloctyl

[0215]

[Formula 100]

$$R_9$$
 R_1
 R_2
 R_8
 R_7

[0216]

Compound 255 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = CN, R_8 = R_9 = 4-t-buthylphenyl

Compound 256 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = H$, $R_8 = n-hexyloxy$, $R_9 = 2-ethylhexyl$

Compound 257 R_1 = 4-decylphenyl, R_2 = R_8 = 3,7-dimethyloctyl, R_7 = H, R_9 = phenyl (4-diphenylamino)

[0217]

[Formula 101]

$$R_7$$
 R_8
 R_1
 R_2

[0218]

Compound 258 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = n-hexyl, R_8 = H

Compound 259 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = n-octyloxy$, $R_8 = CN$

Compound 260 $R_1 = R_7 = 4$ -decylphenyl, $R_2 = 3.7$ -dimethyloctyl, $R_8 = CN$

[0219]

[Formula 102]

[0220]

Compound 261 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 262 $R_1 = R_7 = n-hexyl$, $R_2 = R_8 = phenyl$ (4-diphenylamino)

Compound 263 R_1 = n-hexyl, R_2 = phenyl (4-diphenylamino), R_7 = H, R_8 = 4-decylphenyl

[0221]

[Formula 103]

$$\begin{array}{c|c}
 & R_7 \\
 & R_1 \\
 & R_2 \\
 & N \\
 & N \\
 & R_8
\end{array}$$

[0222]

Compound 264 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = t-butyl, R_8 = n-butyloxy

Compound 265 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = phenyl$, $R_8 = H$

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Compound 266 R $_1$ = 4-decylphenyl, R $_2$ = R $_7$ = 3,7-dimethyloctyl, R $_8$ = methoxy [0223] [Formula 104]

Compound 267 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = R_9 = R_{10} = 2$ —ethylhexyl Compound 268 $R_1 = R_7 = R_9 = n$ —hexyl, $R_2 = R_8 = R_{10} = 4$ —t—buthylphenyl [0225] [Formula 105]

[0226]

Compound 269 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = 2-ethylhexyl$,

Compound 270 $R_1 = R_7 = H$, $R_2 = R_8 = 4-t$ -buthylphenyl

Compound 271 R_1 = 4-(diphenylamino) phenyl, R_2 = R_7 = n-hexyl, R_8 = 4-t-decylphenyl

[0227]

[Formula 106]

[0228]

Compound 272 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = 2-ethylhexyl$,

Compound 273 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_7 = 2-ethylhexyl,

Compound 274 $R_1 = R_2 = 2$ -ethylhexyl, $R_7 = 4$ -t-buthylphenyl

[0229]

[Formula 107]

[0230]

Compound 275 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = R_8 = 2$ -ethylhexyl

Compound 276 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = 4-t-buthylphenyl, R_8 = H

Compound 277 R_1 = n-hexyl, R_2 = R_8 = 3,7-dimethyloctyl, R_7 = phenyl (4-diphenylamino),

Compound 278 R_1 = phenyl, R_2 = 4-decylphenyl, R_7 = 2-ethylhexyl, R_8 = H

[0231]

[Formula 108]

$$R_1$$
 R_2 N N R_2

[0232]

Compound 279 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = R_8 = n-butyl$

Compound 280 $R_1 = R_2 = n-hexyl$, $R_7 = t-butyl$, $R_8 = H$

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran_web_cgi_ejje?atw_u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

Compound 281 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-hexyl$ Compound 282 $R_1 = 4-decylphenyl$, $R_2 = phenyl$, $R_7 = t-butyl$, $R_8 = H$ [0233] [Formula 109]

Compound 283 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = R_8 = n$ -butyl Compound 284 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = n$ -hexyloxy, $R_8 = H$ Compound 285 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n$ -hexyl Compound 286 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = n$ -octyl, $R_8 = H$ Compound 287 $R_1 = 4$ -decylphenyl, $R_2 = p$ henyl, $R_7 = t$ -butyl, $R_8 = H$ [0235] [Formula 110]

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & R_2 \\
\hline
R_8 & R_7
\end{array}$$

[0236]

Compound 288 R_1 = R_2 = n-hexyl, R_7 = R_8 = n-butyl Compound 289 R_1 = R_2 = n-hexyl, R_7 = t-butyl, R_8 = H Compound 290 R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-hexyl Compound 291 R_1 = 4-decylphenyl, R_2 = phenyl, R_7 = t-butyl, R_8 = H [0237] [Formula 111]

$$\begin{bmatrix} R_9 & R_1 & R_2 & R_7 \\ R_9 & R_8 & R_9 & R_9 \end{bmatrix}$$

[0238]

[0241]

Compound 292 $R_1 = R_2 = n$ -hexyl, $R_7 = R_8 = R_9 = 2$ -ethylhexyl

Compound 293 R_1 = 2-ethylhexyl, R_2 = n-hexyl, R_7 = 4-t-buthylphenyl, R_8 = R_0 = H

Compound 294 $R_1 = R_2 = R_9 = 3.7$ -dimethyloctyl, $R_7 = R_8 = phenyl (4-diphenylamino)$

Compound 295 R_1 = phenyl, R_2 = 4-decylphenyl, R_7 = 2-ethylhexyl, R_8 = H, R_9 = JI (4-methylphenyl) AMINO

Concrete molecular structure may be the combination of either of the above-mentioned structures. [0239]

An organic compound containing compound fluorene structure (I), (II), or (III) is compoundable using a well-known method. About polymer, a method of polymerizing polymer obtained as a result used in this invention and a molecular weight do not need to be restricted concretely. A molecular weight of polymer is 2000 or more preferably 1000 or more. Polymer by a coupling reaction including condensation polymerization, for example, Pd catalyst type Suzuki coupling, Stille coupling, Heck coupling, or nickel medium type Yamamoto coupling. Or by carrying out the condensation reaction of a di-acid chloride, di-amine, di-alcohol, or the di-phenol in existence of a base, By or dehalogenation of a method of condensing other, for example, a Wittig reaction, the Horner Emmons reaction, a knoevenagel reaction, or halogenation dibenzyl. Or it can prepare by a radical polymerization of a vinyl compound, ring opening polymerization of a ring compound, or a ring opening methathesis. Preferably, polymer is prepared by the Suzuki coupling reaction.

The Suzuki coupling reaction was reported for the first time by Suzuki etc. about coupling of an aromatic boronate

derivative and an aromatic halogenide (Suzuki and A. other Synthetic Comm. 1981, 11 (7), 513). This reaction has been used broadly because of preparation of polymer for various uses since then (30, Macromolecules 1997, 7686 besides Range and M). This reaction is accompanied by using palladium system catalyst, for example, Pd, (II) or a soluble Pd compound in a state of Pd (0), a base, for example, aquosity inorganic alkali nature carbonate, or bicarbonate, and a solvent for reagin and/or output. Pd (0) complex in which a desirable Pd catalyst has the 3rd phosphine ligand, For example, it is $Pd(PPh_3)_4$, Pd(II) salt, for example, $Pd(PPh_3)$ Cl_2 , or $Pd(OAc)_2$, and is used in the 0.01-10-mol% of range based on a functional group of reagin. Although polar solvents, for example, THF, and a nonpolar solvent, for example, toluene, can be used, it is thought that a nonpolar solvent reacts late. A refining process for preparing conjugated polymer for EL device from Suzuki coupling of an aromatic halogenide and an aromatic boron derivative was reported (Inbasekaran and M others). U.S. Pat. No. 5,777,070 (1998) specification; Towns, the C. international publication 00th/No. 53656 (2000) pamphlet besides R. Aromatic trifluoro methanesulfonate (Tori Flatow) is used for a changed type of the Suzuki coupling reaction instead of an aromatic halogenide (Ritter, K. Synthesis, 1993, 735). Aromatic Tori Flatow is easily prepared from a suitable phenol derivative. It is easily available in a phenol derivative, and advantages which use aromatic Tori Flatow are protection / being able to carry out deprotection during complicated composition. For example, by reacting under various coupling conditions, an aromatic halogenide will generate an undesirable by-product, and will usually complicate a synthetic scheme more remarkable. However, a phenol derivative can be easily protected by various protective groups which do not block functional group conversion, returns a phenolic group by carrying out deprotection, and, subsequently to Tori Flatow, can change this phenolic group. A 2 boron derivative can be prepared from corresponding dihalide or JITORIFURATO.

This invention provides again a manufacturing method of conjugated polymer containing a polymerization reaction mixture. An aromatic monomer in which a polymerization reaction mixture has the reactant Tori Flatow group of

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

two or more (a), And an aromatic monomer which has two or more reactant boron derivative groups chosen from a boron acid, boron acid ester, or a borane group or one reactant Tori Flatow group, A palladium catalyst of an aromatic monomer which has one reactant boron derivative group chosen from a boron acid, boron acid ester, or a borane group, and the (b) catalyst amount, (c) organicity or an inorganic base, and the (d) organic solvent are included. A method of this invention generates conjugated polymer with comparatively low polydispersity and a high molecular weight in comparatively short reaction time. Along with an overall length of a chain, conjugate of the term of "conjugated polymer" is carried out, and it means partial conjugated polymer containing both sides of perfect conjugated polymer which processes a delocalization pi electron system along with a chain or a conjugate segment, and a disconjugation segment.

[0242]

The aromatic monomer used in order to form conjugated polymer of this invention must have suitable functional group:, i.e., Tori Flatow, and a boron derivative group. A term of aromatic series or aryl means arbitrary monomers which have the Tori Flatow group or a boron derivative group directly combined with an aromatic ring or a complex aromatic ring. An aryl di−Tori Flatow monomer which contains by using this method, two system:, i.e., the 1 2 ** reactant Tori Flatow group, And aryl 2 boron monomer; and 2 containing two reactant boron derivative functional groups An aryl monomer containing both the reactant Tori Flatow functional group and a reactant boron derivative functional group is polymerized, and liner polymer can be formed. In order to prepare branching or high branched polymer using a method of this invention, in the case of two monomer systems, Both the aryl monomer must contain two or more the reactant Tori Flatow groups or boron derivative groups, and, in the case of a;1 ** monomer system, the monomer must contain one or more Tori Flatow groups or a boron derivative group, and a basis of two or more another side. A boronic acid group in which a boron derivative functional group is expressed by B(OH) $_2$, A boron acid ester group expressed by B (OR $_{12}$) (OR $_{13}$) (among the above-mentioned formula) R $_{12}$ is a replaced type with 1-6 carbon atoms, or no replacing type alkyl group, or [that R_{13} is hydrogen] — or it being a replaced type with 1-6 carbon atoms, or no replacing type alkyl group, and, And by R_{12} and R_{13} being the same, or differing from each other, and combining R_{12} and R_{13} and, A borane group with which it is expressed by annular boron acid ester,; which can form 5- or 6-membered-ring preferably, and BR₁₄R₁₅ (among the above-mentioned formula) R_{14} and R_{15} are chosen from being a replaced type with 1-20 carbon atoms, and no replacing type alkyl group, respectively. A boron derivative group is a boronic acid group or an annular boron acid ester group preferably. By preparing polymer using a mixture of a monomer, a copolymer which has the desired characteristic and the architecture can be formed. In order to prepare liner polymer, a polymerization system contains the reactant Tori Flatow group of desirable almost equal mole percent, and a reactant boron derivative group. a mole ratio of these two reactant group classes — desirable — 0.98-1.10 — it is 1.00 most preferably less than 1.05. The end cap of the chain end can be carried out by using Tori Flatow of monofunctional value, or a boron derivative in a request.

[0243]

As an example of an aryl group for a monomer, Aromatic hydrocarbon, for example, phenyl, naphthyl, anthracene, a fluorene, A benzofluorene, a dibenzo fluorene, phenanthrene, perylene, Pyrene, rubrene, a chrysene, tetracene, pentacene, triphenylene, Diphenylanthracene, dinaphthyl anthracene, and benzo[a]pyrene; and a complex aromatic group, For example, a thiophene, pyrrole, a franc, pyridine, triazine, tetrazene, Oxazol, imidazole, oxadiazole, thiadiazole, benzooxazol, quinoline, benzimidazole carbazole, benzothiazole, and acridine; and doria — reel amine, for example, a triphenylamine, dinaphthyl phenylamine, and N,N'-diphenylbenzidine are mentioned. Preferably, an aryl group is chosen from a fluorene, a benzofluorene, diphenylanthracene, dinaphthyl anthracene, a thiophene, oxadiazole, benzothiazole, benzimidazole, and carbazole.

A base suitable for using it in a method of this invention, An inorganic aquosity base, for example, alkali metal hydroxide, carbonate, acetate and bicarbonate, Alkali earth metal hydroxide, carbonate, acetate and bicarbonate, an alkaline-earth-metals alkoxide, an alkaline metal alkoxide and an organic base of hydroxyl ion, for example, a source, and a Lewis base, for example, a base which forms a source of hydroxyl ion in existence of water, are included. The organic base should be fusibility an organic solvent and/or underwater. An example of an aquosity inorganic base contains lithium, sodium, potassium, caesium and hydroxide of barium, carbonate, and bicarbonate. Preferably, an aquosity base is a solution of sodium carbonate of concentration of 1–2M, potassium carbonate, or cesium carbonate. An example of an organic base contains hydroxide of alkylammonium, carbonate, bicarbonate, fluoride and borate salt, pyridine, and organic amine. Preferably, organic bases used in a method of this invention

are hydroxide of hydroxide of tetra alkylammonium, carbonate, bicarbonate, for example, tetramethylammonium, tetraethylammonium, or tetrapropylammonium, carbonate, and bicarbonate. Quantity of a base used in this method is not important in particular, as long as the number of mols of a base is equal to the number of mols of a monomer or exceeds this. A base of one to 10 mol equivalent per boron derivative functional group is adopted preferably. A base of one to 5 mol equivalent is used more preferably. As for 1.5 to 4 mol equivalent, a base of 1.8 to 2.5 mol equivalent is specifically used most preferably. A mixture of an independent base or a variously different base can be used for a method of this invention.

A catalyst used for a method of this invention is a palladium catalyst or Pd(II) salt of a gestalt of Pd (0) which has a ligand preferably, or Pd(II) complex. an example of a suitable ligand for a palladium complex -- phosphine, for example, trialkylphosphine, tricyclo alkylphosphine, and doria — it is reel phosphine. Three substituents on Lynn are the same, or may differ, and it can combine with a phosphorus group to which 1 of ligands or two or more change from two or more phosphines. A part of this combination may be one or two metal atoms or more, diketone (dba), for example, dibenzylieneacetone, an acetylacetone, an octafluoro acetylacetone and tertiary amine, for example, triethylamine, trimethylamine, and tripropylamine. These ligands can be made into water solubility by derivatizing by combination of a cation group or an anion group. A mixture of two or more sorts of ligands can also be used. An example of a phosphine ligand used in a method of this invention, Trimethyl phosphine, tributyl phosphine, tri-cyclohexyl phosphine, They are the Tori Torrijos fin, 1,2-bis(diphenylphospino)ethane, triphenyl phosphine, 1,3-bis(diphenylphospino)propane, and 1,1'-(diphenylphospino) ferrocene (dppf). Preferably a ligand Triphenyl phosphine (Ph₂P), 1,1'-(diphenylphospino) ferrocene (dppf), 1,2-bis(diphenylphospino)ethane, It is 1,3-bis (diphenylphospino)propane, and they are triphenyl phosphine (Ph₃P) and 1,1'-(diphenylphospino) ferrocene (dppf) more preferably. Most desirable Pd (0) complex is Ph(Ph3P) 4. Desirable Pd(II) salts are palladium acetate, propionic acid palladium (II), palladium butanoate (II), and a palladium(II) chloride, and more desirable Pd(II) salt is palladium acetate (II). When using a palladium (II) salt, it is advantageous to a reaction mixture to add other ligands of two to 4 mol equivalent per mol of Pd salt, for example, Ph₃P, and dppf. Pd(II) complex, for example, PdCl₂ (PPh₃) 2, bis(acetonitrile)palladiumdichloride and dichlorobis (dimethyl sulfoxide) palladium (II), bis(benzonitrile) palladiumdichloride, or PdCl₂ (dppf) — instead, it can be used. A palladium catalyst can also be located on a charge of a support material, for example, inactive organic resin, quantity of a palladium catalyst typically used into a reaction mixture -- 0.001-1-mol % per 1 mol of monomers -- it is 0.01-1-mol % per 1 mol of monomers preferably.

[0246]

An organic solvent suitable for use in this method contains preferably a solvent which can dissolve a monomer to not less than 2% of solution concentration 1% or more. An example of a solvent suitable for a method of a statement Hydrocarbon, for example, hexane, heptane, Petroleum ether, cyclohexane, benzene, chlorobenzene, ethylbenzene, Mesitylene, toluene and xylene, and ether, for example, an anisole, Diethylether, a tetrahydrofuran, dioxane, dioxolane, Diisopropyl ether, dimethoxyethane, t-butylmethyl ether, and a diethylene glycol, Wood ether, ketone, for example, acetone, methyl ethyl ketone, And isobutyl methyl ketone, alcohol, for example, methanol, ethanol, They are propanol, ethylene glycol, butanol and amide, for example, dimethylformamide, dimethylacetamide, N-methyl pyrrolidone, these fluoridization analogs, and these mixtures.

As for a desirable organic solvent, polymer contains one solvent of fusibility in it. An example of a desirable solvent Ether, for example, a tetrahydrofuran, dioxane, Dimethyloxyethane, diethylene glycol dimethyl ether, diisopropyl ether, Hydrocarbon, for example, benzene, chlorobenzene, toluene, xylene, They are heptane and cyclohexane, ketone, for example, methyl ethyl ketone, and isobutyl methyl ketone, amide, for example, dimethylformamide, dimethylacetamide, N-methyl pyrrolidone, and these mixtures.

[0248]

More desirable organic solvents are ether, for example, a tetrahydrofuran, dimethyloxyethane and dioxane, hydrocarbon, for example, toluene, chlorobenzene, xylene, amide and dimethylformamide, and dimethylacetamide. [0249]

The most desirable organic solvents of a method of this invention are one sort or two sorts or more of insoluble in water nature solvents, for example, toluene, xylene, tetrahydrofurans, or these mixtures. Capacity of a solvent of a method of this invention should be maintained by level for performing efficient mixing and churning in connection with a reaction mixture becoming viscosity from formation of polymer molecular weight.

[0250]

The polymerization reaction mixture can also contain phase transfer catalysis indicated by U.S. Pat. No. 5,777,070 specification. Suitable phase transfer catalysis used in a method of this invention contains the fourth ammonium and phosphonium salt, crown ether, and cryptand. Phase transfer catalysis is a tetra alkylammonium halogenide or a bisulfate preferably. Examples of the most desirable phase transfer catalysis are chloridation tetrabutylammonium and chloridation TORIKAPURIRIRU ammonium (known as Aliquat made from Aldrich Chemical (registered trademark)). The desirable range of 0.01–0.5 mol per mol of monomer of phase transfer catalysis is 0.05–0.1 mol per mol of monomer more preferably.

a polymerization reaction --0-200 **- desirable --30-170 **- more -- desirable --50-150 **- and it is most preferably carried out at temperature of 60-120 **. reaction time --1 to 100 hours -- desirable --5 to 50 hours -- and it is 5 to 48 hours most preferably. [0252]

The method of this invention can extend a range to even use a monomer by which some of reactive functional groups or all are not directly combined with an aromatic ring, especially an unsaturation type monomer of other kinds.

[0253]

A synthetic scheme of a compound by this invention is shown in the schemes 1–11. [0254]

A method of this invention provides an optical device with useful conjugated polymer especially. An optical device is a luminescent device, for example, EL device, and polymer of this invention or a low molecule can contain a device by which a deposit is carried out between a cathode and an anode. The deposit of polymer, low molecules, or such combination can be carried out as a thin film with vacuum deposition, or a deposit can be carried out from a solution by spin coating, spray coating, dip coating, roller coating, or ink jet supply. a thin film — a substrate — it can support directly by a transparent substrate preferably, or can also support indirectly with a substrate, and, in this indirect support, one or two interlayers or more are provided between a substrate and a thin film. A thin film can also be used as a luminous layer or a charge carrier transporting bed.

[0255]

The general device architecture:

This invention is employable as most organic electroluminescence device gestalten. These gestalten from a very simple structure containing a single anode and a cathode. A passive matrix display which comprises an anode for forming a more complicated device, for example, a pixel, and a rectangular array of a cathode, And each pixel contains even an active matrix display independently controlled by a thin film transistor (TFT). [0256]

There are many organic layer gestalten which can carry out this invention well. A typical structure is shown in drawing 1 and this structure contains the substrate 101, the anode 103, the hole injection layer 105, the electron hole transporting bed 107, the luminous layer 109, the electron transport layer 111, and the cathode 113. These layers are explained to the following in detail. This drawing was only shown in order to give an example, and not each thickness is what was defined according to actual thickness. Instead a substrate adjoins a cathode, and may be arranged or a substrate may actually constitute an anode or a cathode. An organic layer between an anode and a cathode is called an organic EL device for convenience. The total compound thickness of an organic layer is less than 500 nm preferably.

[0257]

An anode and a cathode of OLED are connected to the power supply 250 via the electric conductor 260. When an anode applies potential between an anode and a cathode rather than a cathode so that it may be positive potential, the OLED operates. An electron hole is poured in into an organic EL device from an anode, and an electron is poured in into an organic EL device with an anode. Device stability may be able to be improved, when the OLED operates in AC mode, potential bias becomes reverse over predetermined time in a cycle in this case and current does not flow. An example of AC drive type OLED is written in a U.S. Pat. No. 5,552,678 specification. [0258]

Substrate

An OLED device of this invention is typically put on the supporting board 101, and a cathode or the anode can contact a substrate. An electrode in contact with a substrate is called a lower electrode for convenience. For convenience, although a lower electrode is an anode, this invention is not limited to such a gestalt. A substrate may be a light transmittance state or opacity according to a light—emitting direction meant. A light transmission

characteristic is desirable although EL luminescence is seen through a substrate. In such a case, generally, clear glass or a plastic is adopted. A substrate may be a composite construction containing a multiplex material layer. Generally this is applied to an active matrix substrate of an EL layer in which TFT is provided caudad. It is still required for a substrate to comprise an in general transparent material, for example, glass, or polymer in an emission pixel—ized field at least. When it is a use as which EL luminescence is regarded through an upper electrode, the penetration characteristic of a lower supporter may not be important, therefore may be a light transmittance state, optical absorption nature, or light reflex nature. As an example of a substrate for using it in this example, glass, a plastic, a semiconductor material, silicon, ceramics, and circuit board materials are mentioned. In this case, a mist beam and a substrate may be the composite constructions containing a multiplex layer which comprises material which is found out by active—matrix TFT design. Of course, in such a device gestalt, it is required to provide a light transmittance state upper electrode.

[0259]

Anode:

When EL luminescence is seen through the anode 103, an anode should let it pass on a real target through the luminescence concerned. Although common transparent anode materials used in this invention are an indium stannic acid ghost (ITO), an indium zinc oxide (IZO), and tin oxide, However, other metallic oxides, for example, aluminum, or indium dope type tin oxide, magnesium indium oxidation things, and nickel tungsten oxides are also useful. In addition to these oxides, metal nitride, for example, gallium nitride, a metal selenide, for example, zinc selenide, and metallic sulfide, for example, zinc sulfide, can be used as the anode 103. An anode can be reformed by fluorocarbon by which plasma deposition was carried out. When it is a use as which EL luminescence is regarded only by letting a cathode terminal pass, the penetration characteristic of an anode can use transparence and opaque or reflexible arbitrary conductive materials rather than is important. As an example of a conductor for this use, gold, iridium, molybdenum, palladium, and platinum are mentioned. Permeability or other typical anode materials have a working function more than 4.1 eV. Generally the deposit of the desired anode material is carried out by arbitrary suitable means, for example, evaporation, sputtering, chemical vapor deposition, or an electrochemistry means. An anode can be patternized with photolithography method learned well. Arbitrarily, by grinding an anode before spreading of other layers, surface roughness can be reduced, and a short circuit can be minimized, or reflexibility can be improved.

[0260]

Hole injection layer (HIL):

Although not necessarily required, it is often useful that the hole injection layer 105 is formed between the anode 103 and the electron hole transporting bed 107. The hole-injection material can improve the film formation characteristic of a following organic layer, and can be useful to make it easy to pour in an electron hole into an electron hole transporting bed. As an example of a material suitable for using it within a hole injection layer, A porphyrin compound which is written in a U.S. Pat. No. 4,720,432 specification, Plasma deposition type fluorocarbon polymer which is written in a U.S. Pat. No. 6,208,075 specification, And some aromatic amines (4,4',4''-tris [(3-methylphenyl) phenylamino] triphenylamine), for example, m-MTDATA, are mentioned. It is reported that another hole-injection material written in the European patent laying-open-of-application No. 0891121 specification and a 1029909 specification is useful in an organic electroluminescence device. [0261]

Electron hole transporting bed (HTL)

The electron hole transporting bed 107 of an organic electroluminescence device contains, one or more sorts of electron hole transportation compounds, for example, an aromatic tertiary amine. It means that an aromatic tertiary amine is a compound containing one or more tervalence nitrogen atoms, this tervalence nitrogen atom is combined only with a carbon atom, and one or more of the carbon atoms of these are ** of an aromatic ring. in one gestalt — an aromatic tertiary amine — arylamine, for example, monoarylamine, diarylamine, and doria — they may be reel amine or polymers arylamine. a monomer and doria — an example of reel amine is shown in a U.S. Pat. No. 3,180,730 specification besides Klupfel. suitable doria of others which are replaced by one or two vinyl groups or more, and contain/or one or more active hydrogen containing groups — reel amine is indicated by a U.S. Pat. No. 3,567,450 specification and a 3,658,520 specification besides Brantley.

[0262]

A more desirable class of an aromatic tertiary amine is amine containing two or more sorts of aromatic tertiary—amine portions which are written in a U.S. Pat. No. 4,720,432 specification and a 5,061,569 specification. Such a compound is a structural formula (A). : [0263]

http://www4.ipdl.inpit.go.jp/cgi-bin/tran web cgi ejje?atw u=http%3A%2F%2Fwww4.ipdl.inpit.go.jp%... 3/15/2010

[Formula 112]

$$Q_{1 \setminus G'}Q_{2}$$

(A)

[0264]

It is the aromatic tertiary-amine portion as which Q_1 and Q_2 were independently chosen among the above-mentioned formula including the compound expressed be alike, and G is bond groups, for example, the arylene of carbon-carbon bonding, cyclo alkylene, or an alkylene group. 1 operative condition, when like, either [at least] Q_1 or Q_2 contains polycyclic type condensed ring structure, for example, naphthalene. When G is an aryl group, G is convenient in their being phenylene, biphenylene, or a naphthalene portion.

[0265]

filling a structural formula (A) — and two doria — the doria containing a reel amine portion — the useful class of reel amine — structural-formula (B):

[0266]

[Formula 113]

$$R_{18} - C - R_{16}$$
 R_{17}

(B)

[0267]

It is expressed be alike and is among the above-mentioned formula. :

 R_{15} and R_{16} express a hydrogen atom, an aryl group, or an alkyl group independently, respectively, or R_{15} and R_{16} express the atom which joins together and completes a cycloalkyl group ---; --- and

 R_{17} and R_{18} express an aryl group independently, respectively, and this aryl group is a structural formula (C). :

[0268]

[Formula 114]

[0269]

As it indicates "Be alike", it is replaced by the diaryl substitution type amino group, and R_{19} and R_{20} are the independently selected aryl groups among the above-mentioned formula. 1 operative condition, when like, either [at least] R_{19} or R_{20} contains polycyclic type condensation structure, for example, naphthalene.

[0270]

Another class of an aromatic tertiary amine is tetra aryl diamine. Desirable tetra aryl diamine contains two diaryl amino groups combined via an allylene group as shown by a formula (C). Useful tetra aryl diamine is a formula (D).

[0271] [Formula 115]

$$\begin{array}{c} R_{21} \\ N - \left[Ar_3\right]_{t} N \\ R_{23} \end{array}$$
(D)

[0272]

What is expressed be alike is included and it is among the above-mentioned formula. :

Each Ar₃ is the independently selected allylene group, for example, phenylene, or an anthracene portion,

t is an integer of 1-4 -- and

 Ar_4 , R_{21} , R_{22} , and R_{23} are the independently selected aryl groups.

[0273]

In the case of a typical embodiment, at least one of Ar_4 , R_{21} , R_{22} , and R_{23} is polycyclic type condensed ring structure, for example, naphthalene.

[0274]

The alkyl, the alkylene, the aryl, and the arylene portion of the versatility of said structural formula (A), (B), (C), and (D) can be replaced, respectively. A typical substituent contains an alkyl group, an alkoxy group, an aryl group, an aryloxy group and halogen, for example, fluoride, a chloride, and a bromide. The typical number of carbon atoms of various alkyl parts and an alkylene portion is about 1–6. Although the numbers of carbon atoms of a cycloalkyl portion may be 3 – about 10, the number of endocyclic carbon atoms is 5, 6, or 7 typically, for example, a cycloalkyl portion contains cyclopentyl, cyclohexyl, and a cycloheptyl ring structure. Aryl and an arylene portion are usually phenyl and a phenylene portion.

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[0371]

[Drawing 1]Drawing 1 is a sectional view showing the basic structure of EL device.

[Drawing 2] Drawing 2 is a figure showing the absorption (AB) spectrum of the compound 231, and a photoluminescence (PL) spectrum.

[Drawing 3]Drawing 3 is a figure showing EL spectrum of EL device manufactured from the compound 231.

<u>[Drawing 4]</u>Drawing 4 is a figure showing the characteristic of the voltage-current density of EL device manufactured from the compound 231, and luminosity.

<u>[Drawing 5]</u>Drawing 5 is a figure showing the absorption (AB) spectrum of the compound 206, and a photoluminescence (PL) spectrum.

[Drawing 6] Drawing 6 is a figure showing EL spectrum of EL device manufactured from the compound 206. [Drawing 7] Drawing 7 is a figure showing the characteristic of the voltage-current density of EL device

manufactured from the compound 206, and luminosity.

[Translation done.]

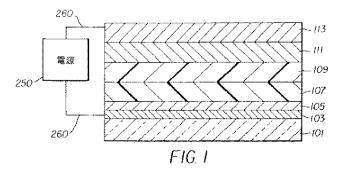
* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DRAWINGS

[Drawing 1]



[Drawing 2]

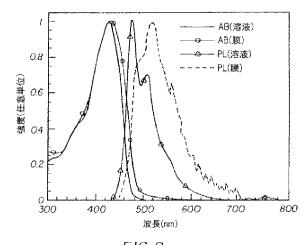
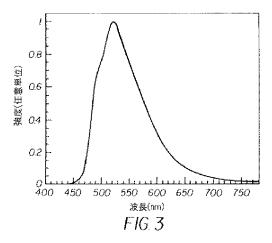
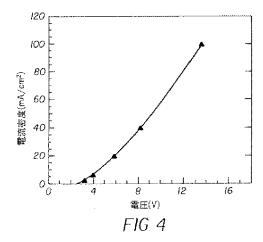


FIG. 2

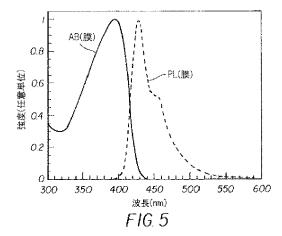
[Drawing 3]



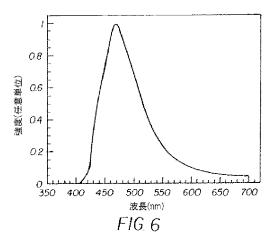
[Drawing 4]



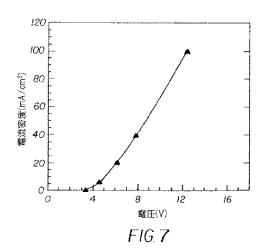
[Drawing 5]



[Drawing 6]



[Drawing 7]



[Translation done.]

(19) **日本国特許庁(JP)**

(12)公表特許公報(A)

(11)特許出願公表番号

特表2006-512395 (P2006-512395A)

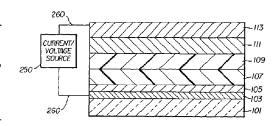
(43) 公表日 平成18年4月13日(2006.4.13)

(51) Int.C1.	F 1			テーマコード (参考)
CO7C 13/62	(2006.01) CO7C	13/62	CSP	3K007
CO9K 11/06	(2006.01) CO9K	11/06	6 1 O	4H006
CO7C 211/54	(2006.01) CO9K	11/06	620	4 J O 3 2
CO7C 211/58	(2006.01) CO9K	11/06	635	
CO7C 211/61	(2006.01) CO9K	11/06	615	
	審査請求 未	請求 予備審	查請求 未請求	(全 99 頁) 最終頁に続く
(21) 出願番号	特願2004-565609 (P2004-565609)	(71) 出願人	590000846	
(86) (22) 出願日	平成15年12月19日 (2003.12.19)		イーストマン	コダック カンパニー
(85) 翻訳文提出日	平成17年8月25日 (2005.8.25)		アメリカ合衆国,	ニューヨーク14650
(86) 国際出願番号	PCT/US2003/040731		, ロチェスター,	、ステイト ストリート3
(87) 国際公開番号	W02004/061048		4 3	
(87) 国際公開日	平成16年7月22日 (2004.7.22)	(74) 代理人	100099759	
(31) 優先権主張番号	10/334, 359		弁理士 青木 🧵	篤
(32) 優先日	平成14年12月31日 (2002.12.31)	(74) 代理人	100077517	
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 石田 4	敬
(81) 指定国	EP (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE,	(74)代理人	100087413	
ES, F1, FR, GB, GR, HU, 1	E, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR		弁理士 古賀 🕈	哲次
), CN, JP, KR		(74)代理人	100102990	
			弁理士 小林]	良博
		(74) 代理人	100082898	
			弁理士 西山 🧗	雅也
				最終頁に続く

(54) 【発明の名称】複合フルオレン含有化合物及びエレクトロルミネセント・デバイス

(57)【要約】

複合フルオレン構造を含む有機化合物であって、該複合フルオレン構造が、下記式のうちの1つによって表され、 X_1 、 X_2 、 X_3 及び X_4 は独立して同じ又は異なるものであり、そしてCH又はNを含有する部分を含み; R_1 、 R_2 、 R_3 及び R_4 は、それぞれが独立して水素、又は炭素原子数1~40のアルキル、アルケニル、アルキニル又はアルコキシ;炭素原子数6~60のアリール又は置換型アリール;又は炭素原子数4~60のヘテロアリール又は置換型ヘテロアリール;又はF、C1又はBr;又はシアノ基;又はニトロ基である置換基であり;或いは、 R_3 又は R_4 又は両方が、縮合型の芳香族環又は複素芳香族環を形成する基である。

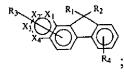


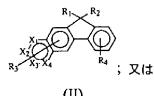
【特許請求の範囲】

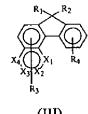
【請求項1】

複合フルオレン構造を含む有機化合物であって、該複合フルオレン構造が、下記式:

【化1】







(III)

のうちの1つによって表され、上記式中:

 X_1 、 X_2 、 X_3 及び X_4 は独立して同じ又は異なるものであり、そしてCH又はNを含有する部分 を含み; R_1 、 R_2 、 R_3 及び R_4 は、それぞれが独立して水素、又は炭素原子数1~40のアルキ ル、アルケニル、アルキニル又はアルコキシ;炭素原子数6~60のアリール又は置換型ア リール;又は炭素原子数4~60のヘテロアリール又は置換型ヘテロアリール;又はF、C1又 はBr;又はシアノ基;又はニトロ基である置換基であり;或いは、R3又はR4又は両方が、 縮合型の芳香族環又は複素芳香族環を形成する基である

ことを特徴とする、複合フルオレン構造を含む有機化合物。

【請求項2】

低分子又はポリマー又はその混合物である、請求項1に記載の複合フルオレン構造を有 する有機化合物。

【請求項3】

式(IV):

10

20

30

40

【化2】

(上記式中、 Y_1 及び Y_2 はそれぞれ独立して、置換型又は無置換型のアルキル、アルケニル、アルキニル、アリール又はヘテロアリール、又はその他の共役基として表され、 y_1 及び y_2 は $0\sim6$ の整数であり、そして Y_1 及び Y_2 は同じ又は異なるものである)によって表される低分子である、請求項1に記載の複合フルオレン構造を有する有機化合物。

【請求項4】

式(V)又は(VI):

【化3】

(上記式中、 X_5 及び X_6 は結合基であり、 Y_1 及び Y_2 はそれぞれ独立して、置換型又は無置換型のアルキル、アルケニル、アルキニル、アリール又はヘテロアリール、又はその他の共役基として表され、x, y_1 及び y_2 は $0\sim 6$ の整数であり、そして Y_1 及び Y_2 は同じ又は異なるものである)の反復単位によって表されるポリマーである、請求項1に記載の複合フルオレン構造を有する有機化合物。

【請求項5】

請求項1に記載の複合フルオレン構造を有する1種又は2種以上の有機化合物を含む、エレクトロルミネセント材料。

【請求項6】

請求項1に記載のエレクトロルミネセント材料の製造方法であって、更なる層を任意に含む基板上に、請求項1に記載の複合フルオレン構造を有する1種又は2種以上の有機化合物を膜として適用することを含む、エレクトロルミネセント材料の製造方法。

50

40

10

【請求項7】

1つ又は2つ以上の活性層を含むエレクトロルミネセント・デバイスであって、該活性層の1つ以上が、請求項1に記載の複合フルオレン構造を有する1種又は2種以上の有機化合物を含む、エレクトロルミネセント・デバイス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

本発明は、複合フルオレン構造を含有する有機化合物に関する。

【背景技術】

[00002]

特にディスプレイ素子及び照明工学の分野において、一連の用途のための大面積ソリッドステート光源に対するニーズは大きい。このような需要は既存の技術のいずれによっても十分に満たすことはできない。エレクトロルミネセント・デバイス、例えば発光ダイオードは、コンベンショナルなディスプレイ素子及び照明素子に取って代わるものである。エレクトロルミネセント・デバイスは、デバイスを通る電流に応じて発光が生じる光電子デバイスである。ELの物理的モデルは、電子と正孔との放射再結合である。LEDの製造には、有機材料と無機材料との双方が使用されている。無機材料、ZnS/Sn、Ga/Bs、Ga/Asが半導体レーザー、小面積ディスプレイ、及びLEDランプなどに使用されている。しかし無機材料は、処理が難しく、また大きな表面積及び効率的な青色光を得るのが難しいという欠点を含む。

[0003]

低分子及び高分子材料の両方を含む有機材料は、LEDのための無機材料に関していくつかの利点を提供する。これらの利点は、例えば、製造がよりシンプルであり、動作電圧が低く、大面積でフルカラーのディスプレイの生産が可能であることである。共役ポリマー、例えばポリ(フェニルビニレン)(PPV)が、Burroughes他によって1990年に、EL材料として最初に導入された(Burroughes, J. H. Nature 1990, 347, 539-41)。それ以来著しい進展が見られ、高分子LEDの安定性、効率及び耐久性が改良されている(Bernius, M.T.他、Adv. Mater. 2000, 12, 1737)。特に大面積ディスプレイに関しては、有機LED(OLED)が、陰極線管及び液晶ディスプレイ(LCD)に基づく十分に確立されたディスプレイ技術の代わりとなる。OLEDは、LCDよりも明るく、薄く、軽くそして高速であることが実証されている。さらにOLEDは所要動作出力がより少なく、より高いコントラストと広い視角(>165度)とを提供し、そして特にポリマー系LED(PLED)の製造コストをよりやすくする大きな可能性を有している。

[0004]

OLED技術は、全ての分野にわたる徹底的な研究活動を促進している。現在、材料研究における多大な努力が、フルカラー・フレキシブル・ディスプレイのための新規の材料に集中している。フルカラー・ディスプレイは三基本色すなわち赤、緑及び青を必要とし、そしてフレキシブル基板は、低い温度及び有機材料の容易な処理を必要とする。PLEDデバイスは両要件を満足させる見込みがある。それというのも、発光色は、化学構造を調節することによってその都度合わせることができ、そして溶液処理は、インクジェット印刷技術によって微細な多色画素をミクロパターン化するのを可能にするからである(Yang, Y.他、J. Mater. Sci.: Mater. Elecron., 2000, 11, 89)。しかし、この難問に対処するためには、処理可能で、安定的な、そして効率的な青色光を発する有機材料が依然として高く望まれる。青色光は広いエネルギー・バンドを必要とする。青色発光ポリマーを主要材料として用いれば、下り勾配エネルギー転移プロセスによって、他の色を生成することが可能である。例えば緑色又は赤色EL発光は、青色ELホスト材料を少量の緑色又は赤色のルミネセント材料でドーピングすることにより、得ることができる。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

[00005]

10

20

30

40

40

本発明の目的は、新規の高効率ルミネセント材料を提供することである。

[0006]

本発明の別の目的は、エネルギー・バンドギャップが広いルミネセント材料を提供する ことである。

[0007]

本発明の更なる目的は、容易な処理のために新規の処理可能な材料を提供することである。

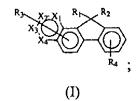
【課題を解決するための手段】

[0008]

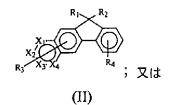
これらの目的は、有機エレクトロルミネセント・デバイスのための下記有機材料を提供することにより達成される。有機材料は下記式(I),(II)又は(III):

[0009]

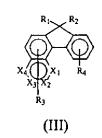
【化1】



20



30



40

[0010]

のうちの1つによって表される複合フルオレン構造を含み、上記式中:

 X_1 、 X_2 、 X_3 及び X_4 は独立して同じ又は異なるものであり、そしてCH又はNを含有する部分を含み; R_1 、 R_2 、 R_3 及び R_4 は、それぞれが独立して水素、又は炭素原子数 $1\sim 40$ のアルキル、アルケニル、アルキニル又はアルコキシ;炭素原子数 $6\sim 60$ のアリール又は置換型アリール;又は炭素原子数 $4\sim 60$ のヘテロアリール又は置換型ヘテロアリール;又はF、C1又はBr;又はシアノ基;又はニトロ基である置換基であり;或いは、 R_3 又は R_4 又は両方が、縮合型の芳香族環又は複素芳香族環を形成する基である。

$[0\ 0\ 1\ 1\]$

本発明は、数多くの利点を有する有機ルミネセント材料を提供する。これらの利点は、

優れた可溶性及び熱安定性、良好な色整調可能性、高い効率及び低い駆動電圧を含む。 【発明を実施するための最良の形態】

[0012]

本発明は、良好な色整調可能性、優れた可溶性及び熱安定性、及び高められた電子及び/又は正孔輸送能力を備えた複合フルオレン構造を含む、極めて効率的な有機発光材料を提供する。複合フルオレンは、式(I)、(II)又は(III)によって表され、 X_1 、 X_2 、 X_3 及び X_4 は独立して同じ又は異なるものであり、そしてCH又はNを含有する部分を含み; R_1 、 R_2 、 R_3 及び R_4 は、それぞれが独立して水素、又は炭素原子数1~40のアルキル、アルケニル、アルキニル又はアルコキシ;炭素原子数6~60のアリール又は置換型アリール;又は炭素原子数4~60のヘテロアリール又は置換型ヘテロアリール;又はF、C1又はBr;又はシアノ基;又はニトロ基である置換基であり;或いは、 R_3 又は R_4 又は両方が、縮合型の芳香族環又は複素芳香族環を形成する基である。

[0013]

例えば R_1 、 R_2 、 R_3 及び R_4 は独立して、水素、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、t-ブチル、ペンチル、ヘキシル、エチルヘキシル、ヘプチル、オクチル、ノニル、デシル、ドデシル、ヘキサデシル、シクロヘキシル、シクロペンチル、メトキシ、エトキシ、ブトキシ、ヘキシルオキシ、エチルヘキシルオキシ、メトキシエトキシエチル、メトキシエチルオキシエトキシエチル、フェニル、トリル、ナフチル、キシレン、アントラセン、フェナントレン、フェニルメチレンフェニル、ベンジル、フェノキシ、ピリジル、チオフェニルである。 R_3 及び R_4 は、縮合型の芳香族環又は複素芳香族環、例えばナフタレン、アントラセン、ペリレン、フェナントレン、ピレン、テトラセン、ペンタセン、トリフェニレン及びベンゾ[a]ピレンを形成する基である。好ましくは R_1 、 R_2 、 R_3 及び R_4 は、水素、t-ブチル、ヘキシル、2-エチルヘキシル、オクチル、3,7-ジメチルオクチル、デシル、ヘプチル、フェニル、2-エチルヘキシル、オクチル、3,7-ジメチルオクチル、デシル、ヘプチル、フェニルアミノ)フェニルであり; R_3 は、縮合型芳香族アントラセン、又はペリレン、又はピレン、フェナントレン、又はテトラセンを形成し、そして R_4 は、ナフタレン又はアントラセンを形成し;或いは、 R_3 又は R_4 又はその両方は、1つ又は2つ以上の置換基を表す。

[0014]

複合フルオレン構造を含む有機化合物は、低分子又はポリマーであり、そして、これら 30 のうちの2種又は3種以上の組み合わせで使用することができる。低分子はデンドリマーを含み、そしてポリマーは高分岐アーキテクチャを含む。

[0015]

複合フルオレン構造を含む低分子は、式(IV):

[0016]

【化2】

(Y₁)y₁一複合フルオレンー(Y₂)y₂ (|), (||), 又は(|||) (IV)

40

50

10

20

[0017]

によって表され、上記式中、 Y_1 及び Y_2 はそれぞれ独立して、置換型又は無置換型のアルキル、アルケニル、アルキニル、アリール又はヘテロアリール、又はその他の共役基を表し、 y_1 及び y_2 は $0\sim6$ の整数であり、そして Y_1 及び Y_2 は同じ又は異なるものである。

[0018]

複合フルオレン構造を含むポリマーは、複合フルオレン構造をポリマー主鎖の一部とし

て含む式(V)の反復ユニット、及び複合構造をポリマー側鎖の一部として含む式(VI)の反復ユニットによって表される。

[0019]

【化3】

;又は

10

(V)

20

[0020]

(上記式中、 X_5 及び X_6 は結合基であり、 Y_1 及び Y_2 はそれぞれ独立して、置換型又は無置換型のアルキル、アルケニル、アルキニル、アリール又はヘテロアリール、又はその他の共 30 役基を表し、x, y_1 及び y_2 は0~6の整数である)

式(IV)、(V)及び(VI)によって表される複合フルオレン構造を含む化合物中にY₁及びY₂単位を組み込むことにより、可溶性、或いは電子又は正孔輸送移動性をさらに改善し、又は発光色を微細に整調することができる。

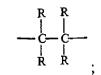
[0021]

 X_5 及び X_6 はそれぞれ独立して結合基を表し、そして一例として、下記基を含む: グループ I:

X₅及びX₆は炭素-炭素結合の結合基:

[0022]

【化4】



10

20

[0023]

(上記式中、Rは、水素、炭素原子数1~40のアルキル、アルキニル、アルケニル基;炭素原子数6~60のアリール又は置換型アリール;又は炭素原子数4~60のヘテロアリール又は置換型ヘテロアリール;又はF、C1又はBr;又はシアノ基;又はニトロ基である)である。 グループ II:

X₅及びX₆はエーテル又はチオエーテル結合基:

[0024]

【化5】

—o—; 又は

30

[0025]

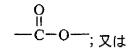
である。

グループIII:

X₅及びX₆はエステル結合基:

[0026]

【化6】



10

[0027]

である。

グループ IV:

X5及びX6は無水物結合基:

[0028]

【化7】

20

[0029]

である。

グループV:

 X_5 及び X_6 はカーボネート結合基:

[0030]

【化8】

40

30

[0031]

である。

グループVI:

X₅及びX₆はスルホン又はスルフィン結合基:

[0032]

【化9】

10

[0033]

である。

グループVII:

 X_5 及び X_6 はアミン結合基:

[0034]

【化10】

20

[0035]

(上記式中Rは上記に定義された通りである)である。

グループVIII:

X₅及びX₆はアミド結合基:

[0036]

【化11】

$$\overset{R}{\overset{0}{-N-C-}};\, \text{Zit}$$

40

30

[0037]

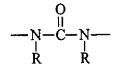
である。

グループ IX:

X5及びX6は尿素結合基:

[0038]

【化12】



[0039]

10

である。

グループ IX:

X₅及びX₆はアリール又はヘテロアリール結合基:

[0040]

【化13】

$$\left(-Ar\right)_n$$

20

30

[0041]

(上記式中、Arは、炭素原子数 $6\sim60$ のアリール又は置換型アリール基;又は炭素原子数 $4\sim60$ のヘテロアリール又は置換型ヘテロアリールであり;nは整数 $1\sim6$ である)である。

[0042]

X₅及びX₆は上記基のうちの1つ、又は2つ以上の組み合わせであってよい。

[0043]

 Y_1 及び Y_2 は置換型又は無置換型アルキル、アルケニル、アルキニル、アリール、ヘテロアリール、又はその他の共役基を表し、そして同じ又は異なるものであってよい。

[0044]

アルキル、アルケニル及びアルキニル基の炭素原子数は1~40であり;

置換型又は無置換型アリール基は炭素原子数6~60であり、フェニル、ビフェニル、ナフチル、アントラセン、フルオレン、フェナントレン、スピロフェニル、ペリレン又はピレン基を含み;

置換型又は無置換型へテロアリール基は炭素原子数4~60であり、ピリジン、チオフェン、ピロール、ビチオフェン、フラン、ベンゾフラン、ベンズイミダゾール、ベンゾオキサゾール、キノキサリン、フェニルキノリン、ジフェニルオキサジアゾール、又はカルバゾールを含む。

[0045]

40

上述の置換基全ての一例としては、炭素原子数1~40のアルキル又はアルコキシ基、炭素原子数6~60のアリール又は置換型アリール;又は炭素原子数4~60のヘテロアリール又は置換型ヘテロアリール;又はF、C1又はBr;又はシアノ基;又はニトロ基が挙げられる

[0046]

Y₁及びY₂は下記群に分けることができる。

グループ I:

Y₁及びY₂は式(VII):

-W-

(III)

(上記式中、Wの炭素原子数は1~28であり、0、N、S、F、C1又はBr、又はSi原子を含有してよい)

のアルキル、アルケニル、又はアルキニル基である。

[0047]

下記構造は式(VII)の具体例:

[0048]

【化14】

-(CH₂)m-

10

(mは1~6の整数である)

【0049】 【化15】

20

(qは0~12の整数である)

【0050】 【化16】

Å X7

30

(X₇はC, O, N又はS原子である)

[0051]

【化17】

20

10

[0052]

を構成する。

グループII:

Y₅及びY₆は、式(VIII):

[0053]

【化18】

$$---(Ar_1)--Z-(Ar_2)---$$

30

40

(VIII)

[0054]

(上記式中、 Ar_1 及び Ar_2 は、炭素原子数 $6\sim60$ の置換型又は無置換型アリール基;又は炭素原子数 $4\sim60$ のヘテロアリールであり;

Zは、炭素原子数 $0\sim40$ の二価結合基であり、N、Si、0、C1、F、Br又はS原子を含有することができる)の結合基Zによって結合されたZつのアリール又はヘテロアリール基である。

[0055]

下記構造は式(VIII)の具体例:

[0056]

【化19】

[0057]

(上記式中、Rは上記に定義された通りであり、2つ以上のこのような置換基を表すことが 10できる):

[0058]

【化20】

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ \end{array}$$

(X₈はC又はSiである)

20

$$R_2$$
 R_2 R_2

$$\begin{array}{c} R \\ R_{i} \\ R_{i} \end{array}$$

30

[0059]

【化21】

【0060】 【化22】

$$R$$
 R_1 R_2

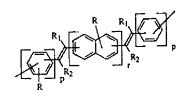
$$R_1$$

10

20

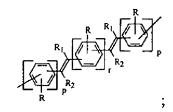
30

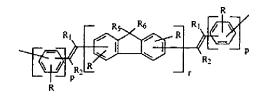
【化23】



(pとrは1~4の整数である)

10





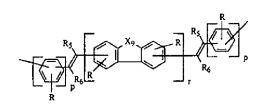
20

[0062]

 $(R_5 及 \mho R_6 は、それぞれが独立して水素、又は炭素原子数1~40のアルキル、アルケニル、アルキニル又はアルコキシ;炭素原子数6~60のアリール又は置換型アリール;又は炭素原子数4~60のヘテロアリール又は置換型ヘテロアリール;又はF、C1又はBr;又はシアノ 30 基;又はニトロ基である);又は$

[0063]

【化24】



40

(X₃はOもしくはS原子、又はN-Rである)

[0064]

を構成する。

グループ III:

Y₁及びY₂は、式(IX):

(IX)

(上記式中、Arは、炭素原子数6~60の置換型又は無置換型アリール基;又は炭素原子数4 ~60の置換型又は無置換型ヘテロアリール、1つ以上又は2つ以上のN, S又は0原子である) のアリール又はヘテロアリール基である。

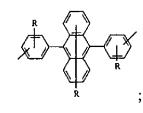
[0065]

下記構造は式(IX)の具体例:

[0066]

【化25】



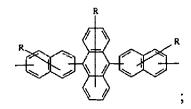


10

20

30

【化26】



 $(X_{10}$ はO原子又は2個のシアノ基である)

10

20

30

【化27】

$$\bigcap_{R} \bigcap_{i=1}^{N} \bigcap_{i=1}^{R_{i,j}} \bigcap_{i=1}^{R$$

10

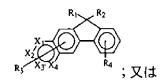
20

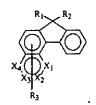
30

40

[0069]

【化28】





10

20

[0070]

を構成する。

[0071]

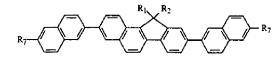
Y₁及びY₂は上記基のうちの1つ、又は2つ以上の組み合わせであってよい。

[0072]

下記構造は、本発明の要件を満たす好ましい化合物の具体例を構成する:

[0073]

【化29】



30

[0074]

化合物1 $R_1 = R_2 = n - \gamma + \nu \nu$ 、 $R_7 = H$

化合物2 $R_1 = R_2 = n -$ オクチル、 $R_7 = H$

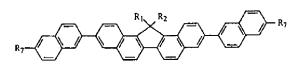
化合物3 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = n$ -ヘキシル

化合物4 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = H$

[0075]

【化30】

40



[0076]

化合物 5 $R_1 = R_2 = n-$ オクチル、 $R_7 = ヘキシル$

化合物6 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = H$

化合物 7 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = H$ 【 0 0 7 7】

【化31】

$$R_1$$
 R_2
 R_7
 R_7

10

[0078]

化合物 8 R₁ = n-ヘキシル、R₂ = 2-エチルヘキシル、R₇ = t-ブチル 化合物 9 R₁ = n-ヘキシル、R₂ = 2-エチルヘキシル、R₇ = 2-エチルヘキシル 化合物 10 R₁ = n-ヘキシル、R₂ = 2-エチルヘキシル、R₇ = 2-エチルヘキシルオキシ 化合物 11 R₁ = R₂ = R₇ = 2-エチルヘキシル

[0079]

【化32】

20

$$R_1$$
 R_2
 R_1
 R_2
 R_1

30

[0800]

化合物12 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = t$ -ブチル

化合物 13 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = R_7 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 14 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

化合物 15 $R_1 = R_2 = R_7 = 2$ -エチルヘキシル

化合物16 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = H$

[0081]

【化33】

$$\begin{array}{c} R_7 \\ R_1 \\ R_2 \\ R_7 \end{array}$$

10

[0082]

化合物 17 R_1 = n-ヘキシル、 R_2 = 2-エチルヘキシル、 R_7 = t-ブチル

化合物 18 $R_1 = n - \gamma + \nu \lambda$ 、 $R_2 = R_7 = 2 - x + \nu \gamma + \nu \lambda$

化合物 19 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

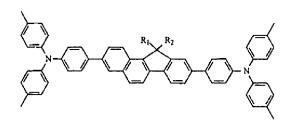
化合物 20 $R_1 = R_2 = R_7 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 21 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = n$ -オクチル

[0083]

【化34】

20



30

[0084]

化合物22 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 23 $R_1 = R_2 = R_7 = n - \gamma + シル$

化合物 24 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 25 $R_1 = R_2 = フェニル$

化合物 26 $R_1 = R_2 = 4-(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル$

[0085]

【化35】



[0086]

化合物 27 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 28 $R_1 = R_2 = 4-(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル$

化合物 29 $R_1 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_2 = n$ -オクチル

[0087]

【化36】

[0088]

化合物30 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 31 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n$ ーヘキシル

化合物 32 $R_1 = R_7 = n - \gamma + \nu$ 、 $R_2 = 2 - x + \nu \gamma + \nu$ 、 $R_8 = H$

[0089]

【化37】

30

20

[0090]

化合物 33 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 34 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n$ ーヘキシル

化合物35 R_1 = R_7 = n-ヘキシル、 R_2 = 2-エチルヘキシル、 R_8 = H

化合物 36 $R_1=R_2=R_7=4-({
m E}\,{
m X}\,(4- extrm{メチルフェニル})アミノ)フェニル、<math>R_8=n-{
m N}$ キシ

ν

[0091]

【化38】

$$R_1$$
 R_2
 R_1
 R_2
 R_3

[0092]

化合物 37 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = t$ -ブチル

化合物 38 $R_1 = n - \gamma + \nu \nu$ 、 $R_2 = R_7 = 2 - x + \nu \gamma + \nu \nu$

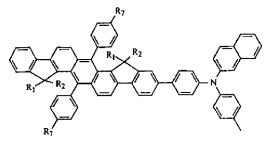
化合物 39 R_1 = n-ヘキシル、 R_2 = 2-エチルヘキシル、 R_7 = 2-エチルヘキシルオキシ

化合物 40 $R_1=R_2=2$ -エチルヘキシル、 $R_7=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル

化合物 41 $R_1=H$ 、 $R_2=4-n$ -デシルフェニル、 $R_7=4-($ ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル

[0093]

【化39】



20

30

10

[0094]

化合物 42 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = R_7 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 43 R₁ = n-ヘキシル、R₂ = 2-エチルヘキシル、R₇ = 2-エチルヘキシルオキシ

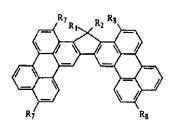
化合物 44 $R_1=H$ 、 $R_2=4-n$ -デシルフェニル、 $R_7=4-($ ビス(4-メチルフェニル)アミノ)

フェニル

化合物 44 $R_1 = H$ 、 $R_2 = 4-n$ -デシルフェニル、 $R_7 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

[0095]

【化 4 0 】



40

[0096]

化合物 45 R_1 = R_3 =n-ヘキシル、 R_2 = R_8 = 2-エチルヘキシル

化合物 46 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = 2$ -エチルヘキシルオキシ、 $R_8 =$ ジフェニルアミノ

化合物 47 $R_1=H$ 、 $R_2=4-n$ -デシルフェニル、 $R_7=R_8=4-($ ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル

化合物 48 $R_1 = H$ 、 $R_2 = 4-n$ -デシルフェニル、 $R_7 = 2$ -エチルヘキシルオキシ、 $R_8 = 4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル

[0097]

【化41】

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & \\ & & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & &$$

【0099】

$$R_1$$
 R_2
 R_7
 R_8
 R_7
 R_8

[0100]

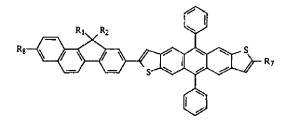
化合物 52 $R_1=R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=R_8=2$ -エチルヘキシル 化合物 53 $R_1=R_7=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=R_8=H$

化合物 54 R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 4-n-デシルフェニル

化合物 55 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-オクチル$

[0101]

【化43】



40

10

20

30

[0102]

化合物 56 R_1 = R_2 = n-ヘキシル、 R_7 = R_8 = 2-エチルヘキシル

化合物 57 $R_1=R_2=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7=R_8=H$

化合物 58 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 4-n$ -デシルフェニル

[0103]

【化44】

10

[0104]

化合物 59 $R_1=R_2=n$ - γ + γ

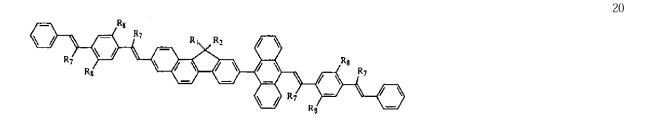
化合物 60 $R_1=R_2=4-($ ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7=H$ 、 $R_8=n-$ へ

キシルオキシ

化合物 61 $R_1 = R_2 = R_8 = 4-n$ -デシルフェニル、 $R_7 = CN$

[0105]

【化45】



[0106]

化合物 62 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = H$ 、 $R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 63 $R_1 = R_2 = R_8 = 4-(\, \forall \, \mathsf{Z} \, (4- \, \forall \, \not \in \, \mathcal{N} \,) \, \mathcal{N} \,$

化合物 64 $R_1 = R_2 = 4-n$ -デシルフェニル、 $R_7 = CN$ 、 $R_8 = n$ -ヘキシルオキシ

[0107]

【化46】

$$R_{8}$$
 R_{1}
 R_{2}
 R_{7}
 R_{7}

40

30

[0108]

化合物 65 $R_1 = R_2 = n - \alpha + \nu \nu$ 、 $R_7 = 2 - \pi + \nu \nu$ 、 $R_8 = t - \tau + \nu \nu$

化合物 66 $R_1 = R_2 = 4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7 = 4$ -t-ブチルフ

ェニル、 $R_8 = t$ -ブチル

化合物 67 R_1 = ヘキシル、 R_2 = 4-n-デシルフェニル、 R_7 = 2-エチルヘキシル、 R_8 = フェニル

[0109]

【化47】

10

[0110]

化合物 68 R_1 = R_2 = n-ヘキシル、 R_7 = 2-エチルヘキシル、 R_8 = CN

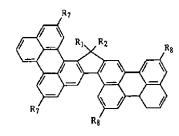
化合物 69 $R_1 = R_2 = 4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7 = フェニル、R_8 = H$

化合物 70 R_1 = ヘキシル、 R_2 = 4-n-デシルフェニル、 R_7 = 2-エチルヘキシルオキシ、 R_8 = フェニル

[0111]

【化48】

20



30

[0112]

化合物71 $R_1 = R_7 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

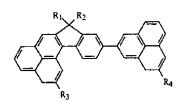
化合物72 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = 2$ -エチルヘキシルオキシ、 $R_8 =$ ジフェニルアミノ

化合物 73 $R_1=H$ 、 $R_2=4-n$ -デシルフェニル、 $R_7=R_8=4-($ ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル

化合物 74 $R_1=H$ 、 $R_2=R_8=4-n$ -デシルフェニル、 $R_7=2$ -エチルヘキシルオキシ

[0113]

【化49】



[0114]

化合物 71 $R_1 = R_3 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = R_4 = 2$ -エチルヘキシル

化合物72 $R_1=n$ -ヘキシル、 $R_2=2$ -エチルヘキシル、 $R_3=R_4=2$ -エチルヘキシルオキシ

化合物 73 $R_1 = R_2 = 4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_3 = R_4 = 4$ -(t-ブチルフェニル)

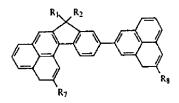
化合物 74 $R_1=H$ 、 $R_2=4-n$ -デシルフェニル、 $R_3=2$ -エチルヘキシルオキシ、 $R_4=2$ -エチルヘキシル

[0115]

【化50】

10

20



[0116]

化合物 75 $R_1 = R_7 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

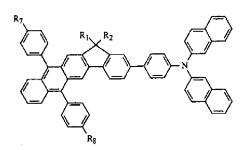
化合物 76 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物77 $R_1 = R_2 = 4-(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、<math>R_7 = R_8 = H$

化合物 78 $R_1 = H$ 、 $R_2 = 4-n$ -デシルフェニル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

[0117]

【化51】



30

[0118]

40

化合物 79 $R_1 = R_7 = n - \gamma + \nu \nu$ 、 $R_2 = R_8 = 2 - \pi \nu \gamma + \nu \nu$

化合物 80 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

化合物81 $R_1 = R_2 = 4-(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、<math>R_7 = R_8 = t-ブチル$

[0119]

【化52】

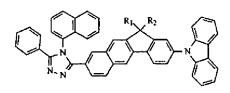
10

[0120]

化合物 82 $R_1=R_2=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7=R_8=2$ -ブチル 化合物 83 $R_1=H$ 、 $R_2=4$ -オクチルフェニル、 $R_7=R_8=2$ -エチルヘキシル 化合物 84 $R_1=R_2=2$ -エチルヘキシル、 $R_7=2$ -エチルヘキシル、 $R_8=3,7$ -ジメチルオクチル

[0121]

【化53】



20

30

[0122]

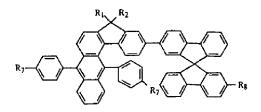
化合物 85 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル

化合物86 $R_1 = 3,7-ジメチルオクチル、<math>R_2 = 4-オクチルフェニル$

化合物87 $R_1 = R_2 = 4-(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル$

[0123]

【化54】



40

[0124]

化合物 88 $R_1=R_2=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7=R_8=n$ -ヘキシル

化合物 89 $R_1=H$ 、 $R_2=4$ -オクチルフェニル、 $R_7=R_8=2$ -エチルヘキシルオキシ

化合物 90 $R_1=R_2=2$ - エチルヘキシル、 $R_7=4$ - t - オクチルフェニル、 $R_8=3$, 7 - ジメチルオクチル

[0125]

【化55】

$$\begin{array}{c} R_1 \\ R_2 \\ R_7 \end{array}$$

10

20

[0126]

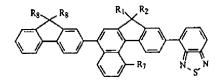
化合物 91 $R_1=R_2=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7=n$ -ヘキシル、R $_8=t$ -ブチル

化合物 92 $R_1=H$ 、 $R_2=4$ -オクチルフェニル、 $R_7=R_8=2$ -エチルヘキシル

化合物 93 $R_1=R_2=2$ - エチルヘキシル、 $R_7=3$, 7 - ジメチルオクチルオキシ、 $R_8=n$ - ヘキシル

[0127]

【化56】



30

[0128]

化合物 94 $R_1=R_2=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7=n$ -ヘキシル、R $_8=$ フェニル

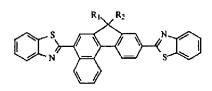
化合物 95 $R_1=R_2=2$ - エチルヘキシル、 $R_7=3$, 7 - ジメチルオクチルオキシ、 $R_8=n$ - ヘキシル

化合物 96 $R_1=R_2=2$ - エチルヘキシル、 $R_7=3$, 7 - ジメチルオクチルオキシ、 $R_8=n$ - ヘキシル

[0129]

【化57】

40



[0130]

化合物 97 $R_1 = R_2 = 4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル 化合物 98 $R_1 =$ エチル = R_2

[0131]

【化58】

$$R_7$$
 R_1
 R_2
 R_8
 R_8

10

20

[0132]

化合物 99 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

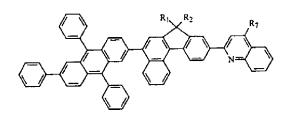
化合物 $100 \quad R_1 = H$ 、 $R_2 = R_7 = 4$ -オクチルフェニル、 $R_8 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

化合物 101 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = t$ -ブチル、 $R_8 =$ ジフェニルアミノ

化合物 102 $R_1=R_2=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7=H$ 、 $R_8=フェニル$

[0133]

【化59】



30

[0134]

化合物 103 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = R_8 = ジメチルアミノ$

化合物 104 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = 4$ -オクチルフェニル、 $R_7 = t$ -ブチル

化合物 105 $R_1 = R_2 = 4-(\, \forall \, Z \, (4 - \, \forall \, \mathcal{F} \, \mathcal{N} \, \, \mathcal{N} \,$

[0135]

【化60】

40

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & R_2 & R_7 \\
R_8 & R_7 & N & O \\
R_8 & R_8
\end{array}$$

[0136]

化合物 106 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = R_8 = フェニル$

40

化合物 107 $R_1=H$ 、 $R_2=R_7=4$ -オクチルフェニル、 $R_8=2$ -エチルヘキシルオキシ

化合物 108 $R_1 = R_2 = n-$ オクチル、 $R_7 =$ ジフェニルアミノ、 $R_8 = t-$ ブチル

化合物 109 $R_1 = R_2 = 4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7 = t$ -ブチル、 $R_8 = フェニル$

[0137]

【化61】

[0138]

化合物 110 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 111 $R_1 = R_2 = R_8 = n - \gamma + シル、R_7 = フェニル$

化合物 112 $R_1=R_7=n$ - α + > ν + ν +

化合物 113 $R_1=H$ 、 $R_2=4$ -デシルフェニル、 $R_7=n$ -ヘキシル、 $R_8=3$,7-ジメチルオクチル

[0139]

【化62】

$$R_1$$
 R_2 R_3 R_4 R_5 R_8

[0140]

化合物114 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = R_8 = フェニル$

化合物 115 $R_1 = R_7 = H$ 、 $R_2 = R_8 = 4$ -オクチルフェニル

化合物 116 $R_1=R_7=n$ - オクチル、 $R_7=4$ - (ジフェニルアミノ)フェニル、 $R_8=2$ - エチルヘキシル

化合物 117 $R_1=R_2=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7=n$ -デシル、 $R_8=3,7$ -ジメチルオクチル

[0141]

【化63】

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & & \\ & & \\ & & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & & \\ & &$$

10

20

30

[0142]

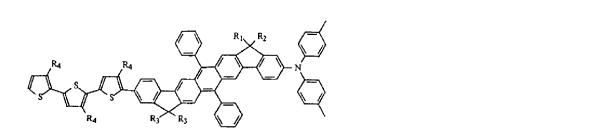
化合物 118 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 119 $R_1=R_7=n$ - ヘキシル、 $R_2=R_8=4$ - オクチルフェニル

化合物 120 $R_1=R_2=n$ -オクチル、 $R_7=4$ -(ジフェニルアミノ)フェニル、 $R_8=2$ -エチルヘキシル

[0143]

【化64】



[0144]

化合物 121 $R_1 = R_2 = R_7 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_8 = 4$ -ヘキシルフェニル

化合物 122 $R_1=H$ 、 $R_2=R_7=3$, 7-ジメチルオクチル、 $R_8=2$ -エチルヘキシル

化合物 123 $R_1=R_7=4$ -(ジフェニルアミノ)フェニル、 $R_2=n$ -オクチル、 $R_8=n$ -ヘキシル

化合物 124 $R_1=R_2=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7=n$ -デシル、 $R_8=H$

[0145]

【化65】



化合物 125 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 126 $R_1=H$ 、 $R_2=R_7=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_8=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 127 $R_1=R_7=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=R_8=n$ -デシル

[0147]

【化66】

10

[0148]

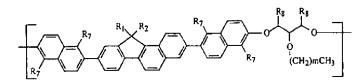
化合物 128 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル、m = 10、q = 6

化合物 129 $R_1=H$ 、 $R_2=4$ -デシルフェニル、 $R_7=R_8=3$,7-ジメチルオクチル、m = 2, q = 5

化合物 130 $R_1=R_7=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=R_8=n$ -デシ 20 ル、n=q=1

[0149]

【化67】



30

[0150]

化合物 131 $R_1=R_2=2$ - エチルヘキシル、 $R_7=n$ - ヘキシルオキシ、 $R_8=$ エチル、m=10

化合物 132 $R_1 = R_2 = 4$ -デシルフェニル、 $R_7 = H$ 、 $R_8 = n$ -ヘキシル、m = 1

化合物 133 $R_1 = R_2 = n - \gamma +$ シル、 $R_7 = R_8 = H$ 、m = 11

化合物 134 $R_1 = R_2 = 4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_3 = ジフェニルア$

 $\gtrsim \mathcal{I}$, $R_4 = H$, m = 17

[0151]

【化68】

10

[0152]

化合物 135 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル、m = 3

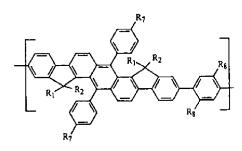
化合物 136 $R_1 = H$ 、 $R_2 = R_7 = 3,7$ -ジメチルオクチル、 $R_8 = (4$ -ジフェニルアミノ)フェニル、m=2

化合物 137 $R_1=R_7=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=R_8=n$ -デシル、m=3

[0153]

【化69】

20



30

[0154]

化合物 137 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 138 $R_1=H$ 、 $R_2=R_7=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_8=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 139 $R_1=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=n$ -デシル、 $R_7=t$ -ブチル、 $R_8=n$ -ヘキシルオキシ

[0155]

【化70】

$$R_2$$
 R_1
 R_2
 R_3
 R_8

10

20

[0156]

化合物 140 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 141 $R_1=H$ 、 $R_2=R_7=3,7$ -ジメチルオクチル、 $R_8=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

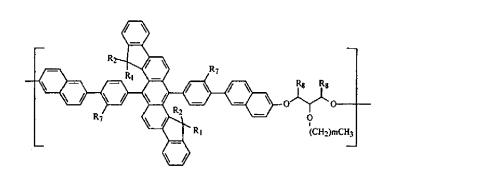
化合物 142 $R_1=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=n$ -デシル、 $R_7=t$ -ブチル、 $R_8=n$ -ヘキシルオキシ

化合物 143 $R_1=4$ -(N-カルバゾール)フェニル、 $R_2=n$ -デシル、 $R_7=2$ -エチルヘキシルオキシ、 $R_8=n$ -ヘキシル

化合物 144 R_1 = 4-(n-デシル)フェニル、 R_2 = R_7 = R_8 = H

[0157]

【化71】



30

[0158]

化合物 145 $R_1=R_2=2$ - エチルヘキシル、 $R_7=n$ - ヘキシルオキシ、 $R_8=$ エチル、m=1 40 0

化合物 146 $R_1=R_2=4$ -デシルフェニル、 $R_7=H$ 、 $R_8=n$ -ヘキシル、m=1

化合物 147 $R_1=R_7=R_8=H$ 、 $R_2=4$ -デシルフェニル、m=11

化合物 148 $R_1=R_2=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_7=$ ジフェニルア

 \gtrsim \nearrow , R_8 = H, m = 17

[0159]

【化72】

$$\begin{array}{c|c} & R_1 & R_2 & R_7 & R_8 \\ \hline R_7 & R_8 & \hline \end{array}$$

10

[0160]

化合物 149 $R_1=R_2=2$ - エチルヘキシル、 $R_7=n$ - ヘキシルオキシ、 $R_8=$ エチル、X= C 化合物 150 $R_1=R_2=2$ - エチルヘキシル、 $R_7=n$ - ヘキシル、 $R_8=$ C F_3 、 X= C

化合物 151 $R_1=R_7=4$ -デシルフェニル、 $R_2=H$ 、 $R_8=n$ -ブチル、X=Si

化合物 152 $R_1=H$ 、 $R_2=4-(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、<math>R_7=$ ジフェニルアミノ、 $R_8=$ n-ヘキシル、X= Si

[0161]

【化73】

20

[0162]

30

化合物 154 $R_1=H$ 、 $R_2=R_7=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_8=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

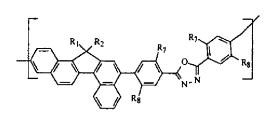
化合物 155 $R_1=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=n$ -デシル、 $R_7=t$ -ブチル、 $R_8=n$ -ヘキシルオキシ

化合物 156 $R_1=4$ -(N-カルバゾール)フェニル、 $R_2=n$ -デシル、 $R_7=2$ -エチルヘキシルオキシ、 $R_8=n$ -ヘキシル

[0163]

【化74】

40



[0164]

化合物 157 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

化合物 158 $R_1=H$ 、 $R_2=R_7=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_8=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 159 $R_1=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=n$ -デシル、 $R_7=t$ -ブチル、 $R_8=n$ -ヘキシルオキシ

[0165]

【化75】

10

[0166]

化合物 160 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

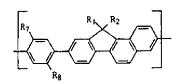
化合物 161 $R_1=H$ 、 $R_2=R_7=3,7$ -ジメチルオクチル、 $R_8=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

20

化合物 162 $R_1=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=n$ -デシル、 $R_7=t$ -ブチル、 $R_8=n$ -ヘキシルオキシ

[0167]

【化76】



30

40

[0168]

化合物 163 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

化合物 164 $R_1=n$ - γ + γ +

化合物 165 $R_1 = R_2 = n - \gamma +$ シル、 $R_7 = R_8 = H$

化合物 166 $R_1 = 4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2 = n$ -デシル、 $R_7 = t$ -ブチル、 $R_8 = n$ -ヘキシルオキシ

化合物 167 $R_1 = R_2 = n - \gamma + \nu \nu$ 、 $R_7 = R_8 = n - \tau \phi$ チル

化合物 168 $R_1 = R_2 = n - \gamma + \nu \nu$ 、 $R_7 = R_8 = n - \gamma + \nu \nu \tau + \nu$

[0169]

【化77】

$$\begin{array}{c|c} & R_1 & R_2 \\ \hline & R_2 & R_3 \\ \hline & R_7 & R_8 \\ \hline \end{array}$$

[0170]

10

化合物 169 $R_1 = R_2 = n - \triangle + \ge D$ 、 $R_7 = R_8 = 2 - エチルヘキシル$

化合物 170 $R_1=H$ 、 $R_2=R_7=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_8=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 171 $R_1 = 4-($ ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2 = n-$ デシル、 $R_7 = R_8 = n-$ ヘキシル

[0171]

【化78】

20

30

[0172]

化合物 172 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 4$ -オクチルフェニル

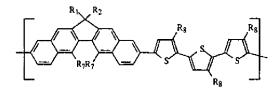
ミノ)フェニル

化合物 174 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n - \gamma + シル$

= n-オクチル

[0173]

【化79】



40

[0174]

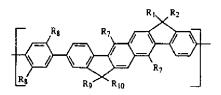
化合物 176 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = n$ -ヘキシルオキシ、 $R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 177 $R_1 = R_7 = n$ - \wedge + シル、 $R_2 = 3$, 7 - ジメチルオクチル、 $R_8 = (4$ - ジフェニルア

ミノ)フェニル

化合物 178 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-$ キシル

チル、R₈ = n-ヘキシル 【0175】 【化80】



10

[0176]

化合物 180 $R_1=R_2=R_9=R_{1\,0}=n$ ーヘキシル、 $R_7=R_8=n$ ーエチルヘキシルオキシ化合物 181 $R_1=R_9=n$ ーヘキシル、 $R_2=R_7=R_{1\,0}=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_8=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

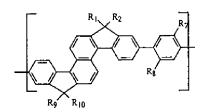
化合物 182 $R_1=R_2=R_9=R_{1\,0}=n$ ーヘキシル、 $R_7=n$ ーヘキシルオキシ、 $R_8=H$ 化合物 183 $R_1=R_9=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=R_{1\,0}=n$ -デシル、 $R_7=t$ -ブチル、 $R_8=n$ -ヘキシルオキシ

化合物 184 $R_1=R_2=R_9=R_{1\,0}=n$ - \sim キシル、 $R_7=n$ \sim キシルオキシ、 $R_8=n$ - オクチ 20 ル

化合物 185 $R_1 = R_2 = R_9 = R_{10} = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = n$ -ヘキシルオキシ

[0177]

【化81】



30

40

[0178]

化合物 186 $R_1=R_2=R_9=R_{1\,0}=n$ - ヘキシル、 $R_7=n$ - ヘキシルオキシ、 $R_8=H$ 化合物 187 $R_1=R_2=R_9=R_{1\,0}=n$ - ヘキシル、 $R_7=R_8=(4$ - ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 188 $R_1=R_2=R_7=R_8=R_9=R_{10}=n$ ーヘキシル 化合物 189 $R_1=R_9=4$ -デシルフェニル、 $R_2=R_{10}=H$ 、 $R_7=R_8=n$ ーヘキシルオキシ 【 0 1 7 9 】

【化82】

[0180]

10

化合物 190 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n$ -ヘキシル

化合物 191 $R_1=H$ 、 $R_2=R_7=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_8=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 192 $R_1 = 4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2 = n$ -デシル、 $R_7 = R_8 = n$ -ヘキシル

[0181]

【化83】

$$\begin{array}{c|c} R_1 & R_2 \\ \hline \\ R_2 & \hline \\ R_2 & \hline \\ R_3 & \hline \end{array}$$

[0182]

30

20

化合物 193 $R_1 = R_2 = n - \gamma + \nu$ 、 $R_7 = R_8 = n - \nu$ チル

化合物 194 $R_1=R_2=2$ - エチルヘキシル、 $R_7=R_8=(4$ - ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 195 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n$ -ヘキシル

化合物 196 R_1 = 4-デシルフェニル、 R_2 = H、 R_7 = R_8 = CF_3

[0183]

【化84】

40

[0184]

化合物 197 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 R_8 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

化合物 198 $R_1 = R_2 = n - \gamma + \nu \nu$ 、 $R_7 = R_8 = H$

化合物 199 $R_1 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = H$

化合物 200 R_1 = n-ヘキシル、 R_2 = R_7 = 3,7-ジメチルオクチル、 R_8 = (4-ジフェニルア

ミノ)フェニル

化合物 201 $R_1=2$ -エチルヘキシル、 $R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=R_8=n$ -ヘキシルオキシ 化合物 202 $R_1=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2=n$ -デシル、 $R_7=t$ -ブチル、 $R_8=n$ -ヘキシルオキシ

[0185]

【化85】

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & R_2 \\
\hline
R_8 & R_7
\end{array}$$

10

20

[0186]

化合物 203 $R_1 = R_2 = n - \gamma + \nu \lambda$ 、 $R_7 = R_8 = 2 - \chi + \chi \gamma + \nu \lambda$

化合物 204 R_1 = 2-エチルヘキシル、 R_2 = n-ヘキシル、 R_7 = R_8 = H

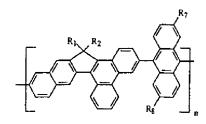
化合物 205 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = R_8 = 3,7$ -ジメチルオクチル、 $R_7 = (4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 206 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = t$ -ブチル、 $R_8 = H$

化合物 207 $R_1 = 4-($ ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル、 $R_2 = n-$ デシル、 $R_7 = n-$ ブチル、 $R_8 = n-$ ヘキシルオキシ

[0187]

【化86】



30

[0188]

化合物 208 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシルオキシ

化合物 209 $R_1 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = n$ -ブチル

化合物 210 $R_1=n$ - ヘキシル、 $R_2=(4$ - ジフェニルアミノ)フェニル、 $R_7=H$ 、 $R_8=3$,7- 40 ジメチルオクチル

化合物 211 $R_1=R_2=n$ ーヘキシル、 $R_7=R_8=4$ -(ビス(4-メチルフェニル)アミノ)フェニル

[0189]

【化87】

$$\begin{array}{c|c} R_1 & R_2 & R_7 \\ \hline \\ R_8 & R_7 \end{array}$$

[0190]

10

化合物 212 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

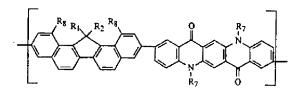
化合物 213 R_1 = 2-エチルヘキシル、 R_2 = n-ヘキシル、 R_7 = 4-t-ブチルフェニル、 R_8 = H

化合物 214 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = R_8 = 3,7$ -ジメチルオクチル、 $R_7 = (4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 215 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_8 = H$

[0191]

【化88】



20

[0192]

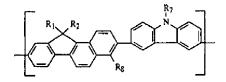
化合物 216 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 217 R_1 = 2-エチルヘキシル、 R_2 = n-ヘキシル、 R_7 = 4-t-ブチルフェニル、 R_8 = 30 H

化合物 218 $R_1=n$ -ヘキシル、 $R_2=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_7=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル、 $R_8=n$ -ヘキシルオキシ

[0193]

【化89】



40

[0194]

化合物 219 $R_1 = R_2 = n - \gamma + \nu \nu$ 、 $R_7 = R_8 = 2 - \chi + \nu \gamma + \nu \nu$

化合物 220 R_1 = 2-エチルヘキシル、 R_2 = n-ヘキシル、 R_7 = 4-t-ブチルフェニル、 R_8 = n-ヘキシルオキシ

化合物 218 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_8 = H$

[0195]

【化90】

$$\begin{array}{c|c} R_1 & R_2 \\ \hline \\ R_8 & \hline \\ \\ R_7 & \end{array}$$

10

[0196]

化合物 222 $R_1 = R_2 = n - \gamma + \nu$ 、 $R_7 = R_8 = n - \nu$ チル

化合物 223 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = R_8 = (4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 224 R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-ヘキシル

化合物 225 $R_1 = 4$ -デシルフェニル、 $R_2 = H$ 、 $R_7 = R_8 = CF_3$

[0197]

【化91】

20

30

[0198]

化合物 226 $R_1=R_2=n$ - ヘキシル、 $R_7=n$ - ブチル、 $R_8=H$

化合物 227 R_1 = R_2 = 2-エチルヘキシル、 R_7 = 4-t-ブチルフェニル、 R_8 = CN

化合物 228 $R_1 = 4$ -デシルフェニル、 $R_2 = H$ 、 $R_7 = CF_3$ 、 $R_8 = フェニル$

[0199]

【化92】

$$R_1$$
 R_2 R_7 R_9 R_7

40

[0200]

化合物 229 $R_1=R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=$ フェニル、 $R_8=R_9=$ 2-エチルヘキシル 化合物 230 $R_1=$ 2-エチルヘキシル、 $R_2=$ n-ヘキシル、 $R_7=$ $R_8=$ H、 $R_9=$ 4-t-ブチル フェニル

10

化合物 232 $R_1=n$ -ヘキシル、 $R_2=R_8=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_7=H$ 、 $R_9=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

[0201]

【化93】

$$R_1$$
 R_2 R_7 R_8 R_7

[0202]

化合物 233 $R_1=2$ -エチルヘキシル、 $R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=CN$ 、 $R_8=R_9=4$ -t-ブチルフェニル

化合物 234 $R_1=R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=R_8=H$ 、 $R_9=2$ -エチルヘキシル 20 化合物 235 $R_1=4$ -デシルフェニル、 $R_2=R_8=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_7=H$ 、 $R_9=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

[0203]

【化94】

$$\begin{array}{c} R_{1} \\ R_{2} \\ R_{8} \end{array}$$

[0204]

化合物 236 $R_1=2$ -エチルヘキシル、 $R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=CN$ 、 $R_8=R_9=4$ -t-ブチルフェニル

化合物 238 $R_1 = 4$ -デシルフェニル、 $R_2 = R_8 = 3,7$ -ジメチルオクチル、 $R_7 = H$ 、 $R_9 = (404-ジフェニルアミノ)フェニル$

[0205]

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ \hline R_8 & & & \\ \hline N_{N} & & & \\ \hline \end{array}$$

30

[0206]

化合物 239 $R_1 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = t$ -ブチル、 $R_8 = H$

化合物 240 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = フェニル、<math>R_8 = CN$

化合物 241 $R_1 = 4$ -デシルフェニル、 $R_2 = R_7 = 3$,7-ジメチルオクチル、 $R_8 = メチル$

[0207]

【化96】

[0208]

化合物 242 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 243 $R_1=R_2=n$ ー ヘキシル、 $R_7=4$ - デシルフェニル、 $R_8=2$ - エチルヘキシルオ

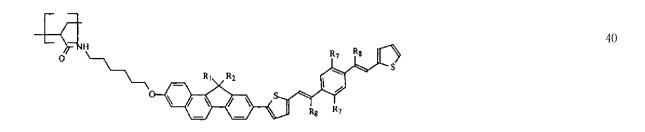
キシ

化合物 244 $R_1=(4-\Im r$ ミノフェニル)フェニル、 $R_2=R_7=3,7-\Im x$ チルオクチル、 R_8

= H

[0209]

【化97】



[0210]

化合物 245 $R_1=2$ -エチルヘキシル、 $R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=t$ -ブチル、 $R_8=H$ 化合物 246 $R_1=R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=n$ -オクチルオキシ、 $R_8=CN$

化合物 247 R_1 = 4-デシルフェニル、 R_2 = R_7 = 3,7-ジメチルオクチル、 R_8 = CN

[0211]

【化98】

$$\begin{array}{c|c} & & & \\ \hline \\ & & \\ \end{array}$$

10

20

[0212]

化合物 248 $R_1 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = t$ -ブチル

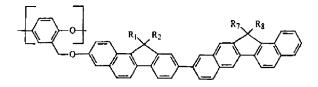
化合物 249 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = フェニル$

化合物 250 $R_1 = 4$ -デシルフェニル、 $R_2 = n$ -オクチル、 $R_7 = CN$

化合物 251 $R_1=4$ -(ジフェニルアミノ)フェニル、 $R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=n$ -ヘキシルオキシ

[0213]

【化99】



30

50

[0214]

化合物 252 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = R_8 = 4$ -t-ブチルフェニル

化合物 253 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n-オクチル$

化合物 254 $R_1=R_7=4$ -デシルフェニル、 $R_2=R_8=3$,7-ジメチルオクチル

[0215]

【化100】

$$\begin{array}{c|c} R_{9} \\ \hline \\ R_{1} \\ \hline \\ R_{2} \\ \hline \\ R_{8} \\ \hline \\ R_{7} \\ \hline \end{array}$$

[0216]

化合物 255 $R_1=2$ -エチルヘキシル、 $R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=CN$ 、 $R_8=R_9=4$ -t-ブチルフェニル

化合物 256 $R_1=R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=H$ 、 $R_8=n$ -ヘキシルオキシ、 $R_9=2$ -エチルヘ

キシル

化合物 257 $R_1=4$ -デシルフェニル、 $R_2=R_8=3$,7-ジメチルオクチル、 $R_7=H$ 、 $R_9=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

[0217]

【化101】

$$R_1$$
 R_2
 R_1
 R_2

[0218]

化合物 258 R_1 = 2-エチルヘキシル、 R_2 = n-ヘキシル、 R_7 = n-ヘキシル、 R_8 = H

化合物 259 $R_1=R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=n$ -オクチルオキシ、 $R_8=CN$

化合物 260 $R_1 = R_7 = 4$ -デシルフェニル、 $R_2 = 3,7$ -ジメチルオクチル、 $R_8 = CN$

[0219]

【化102】

$$\{x_1, x_2, \dots, x_N\}$$

30

20

[0220]

化合物 261 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 262 $R_1 = R_7 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = R_8 = (4$ -ジフェニルアミノ)フェニル

化合物 263 $R_1=n$ -ヘキシル、 $R_2=(4$ -ジフェニルアミノ)フェニル、 $R_7=H$ 、 $R_8=4$ -デ

シルフェニル

[0221]

【化103】

40

[0222]

化合物 264 $R_1=2$ -エチルヘキシル、 $R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=t$ -ブチル、 $R_8=n$ -ブチル

40

オキシ

化合物 265 $R_1 = R_2 = n - \gamma + \nu \lambda$ 、 $R_7 = フェニル、<math>R_8 = H$

化合物 266 $R_1 = 4$ -デシルフェニル、 $R_2 = R_7 = 3,7$ -ジメチルオクチル、 $R_8 = メトキシ$

[0223]

【化104】

$$\begin{array}{c}
R_{10} \\
R_{2} \\
R_{3}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
R_{2} \\
R_{1} \\
R_{8}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
R_{2} \\
R_{7}
\end{array}$$

[0224]

化合物 267 R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = R_9 = $R_{1\,0}$ = 2-エチルヘキシル

化合物 268 $R_1=R_7=R_9=n$ - \sim キシル、 $R_2=R_8=R_{10}=4$ - t - ブチルフェニル

[0225]

【化105】

$$\begin{array}{c} R_{1} \\ R_{7} \\ \end{array}$$

[0226]

化合物 269 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル、

化合物 270 $R_1 = R_7 = H$ 、 $R_2 = R_8 = 4-t$ -ブチルフェニル

化合物 271 $R_1 = 4$ -(ジフェニルアミノ)フェニル、 $R_2 = R_7 = n$ -ヘキシル、 $R_8 = 4$ -t-デ

シルフェニル

[0227]

【化106】

$$R_1$$
 R_2 N

10

[0228]

化合物272 $R_1 = R_2 = n - \gamma +$ シル、 $R_7 = 2 -$ エチルヘキシル、

化合物 273 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = R_7 = 2$ -エチルヘキシル、

化合物 274 $R_1 = R_2 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_7 = 4$ -t-ブチルフェニル

[0229]

【化107】

20

[0230]

化合物 275 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = 2$ -エチルヘキシル

化合物 276 R_1 = 2-エチルヘキシル、 R_2 = n-ヘキシル、 R_7 = 4-t-ブチルフェニル、 R_8 =

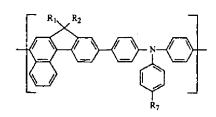
Н

化合物 277 $R_1 = n$ -ヘキシル、 $R_2 = R_8 = 3$,7-ジメチルオクチル、 $R_7 = (4$ -ジフェニルア 30 ミノ)フェニル、

化合物 278 $R_1 = フェニル、<math>R_2 = 4$ -デシルフェニル、 $R_7 = 2$ -エチルヘキシル、 $R_8 = H$

[0231]

【化108】



40

[0232]

化合物 279 $R_1 = R_2 = n - \gamma + \nu$ 、 $R_7 = R_8 = n - \gamma + \nu$

化合物 280 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = t$ -ブチル、 $R_8 = H$

化合物 281 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n$ -ヘキシル

化合物 282 $R_1 = 4$ -デシルフェニル、 $R_2 = フェニル、<math>R_7 = t$ -ブチル、 $R_8 = H$

[0233]

【化109】

10

[0234]

化合物 283 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = R_8 = n$ -ブチル

化合物 284 $R_1 = R_2 = n$ -ヘキシル、 $R_7 = n$ -ヘキシルオキシ、 $R_8 = H$

化合物 285 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n - \triangle + シル$

化合物 286 $R_1=R_2=n$ ーヘキシル、 $R_7=n$ ーオクチル、 $R_8=H$

化合物 287 $R_1 = 4$ -デシルフェニル、 $R_2 = フェニル、<math>R_7 = t$ -ブチル、 $R_8 = H$

[0235]

【化110】

20

$$\begin{array}{c|c}
R_1 & R_2 \\
R_8 & R_7
\end{array}$$

[0236]

30

40

化合物 288 $R_1 = R_2 = n-$ n- n-

化合物 289 $R_1=R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=t$ -ブチル、 $R_8=H$

化合物 290 $R_1 = R_2 = R_7 = R_8 = n$ -ヘキシル

化合物 291 R_1 = 4-デシルフェニル、 R_2 = フェニル、 R_7 = t-ブチル、 R_8 = H

[0237]

【化111】

$$\begin{bmatrix} R_9 & R_7 & R_7 \\ R_9 & R_8 & R_9 \end{bmatrix}$$

[0238]

化合物 292 $R_1=R_2=n$ -ヘキシル、 $R_7=R_8=R_9=2$ -エチルヘキシル

化合物 293 R_1 = 2-エチルヘキシル、 R_2 = n-ヘキシル、 R_7 = 4-t-ブチルフェニル、 R_8 =

 $R_9 = H$

化合物 294 $R_1=R_2=R_9=3$, 7-ジメチルオクチル、 $R_7=R_8=(4$ -ジフェニルアミノ) フ 50

20

30

40

50

ェニル

化合物 295 R_1 =フェニル、 R_2 = 4-デシルフェニル、 R_7 = 2-エチルヘキシル、 R_8 = H、R。 = ジ(4-メチルフェニル)アミノ

具体的な分子構造は、上記構造のうちのいずれかの組み合わせであってよい。

[0239]

複合フルオレン構造(I)、(II)又は(III)を含む有機化合物は、周知の方法を用いて合成することができる。ポリマーに関しては、本発明において用いられる、結果として得られるポリマーの重合法、及び分子量は具体的に制限される必要はない。ポリマーの分子量は1000以上、好ましくは2000以上である。ポリマーは、縮重合、例えばPd触媒型スズキ・カップリング、シュティレ・カップリング又はヘック・カップリング、又はNi媒介型ヤマモト・カップリングを含むカップリング反応によって、又は、塩基の存在においてジー酸塩化物とジーアミン、ジーアルコール又はジーフェノールとを縮合反応させることによって、又はその他の縮合法、例えばウィッティヒ反応、又はホーナー・エモンズ反応、クネーフェナーゲル反応、又はハロゲン化ジベンジルの脱ハロゲン化によって、又はビニル化合物のラジカル重合、又は環状化合物の開環重合、又は開環メタセシス重合によって調製することができる。好ましくは、ポリマーはスズキ・カップリング反応によって調製される。

[0240]

スズキ・カップリング反応は、芳香族ボロン酸誘導体と芳香族ハロゲン化物とのカップ リングに関して、Suzuki他によって初めて報告された(Suzuki, A.他 Synthetic Comm. 19 81, 11(7), 513)。それ以来、この反応は、種々の用途のためのポリマーの調製のために 幅広く使用されている(Range, M他、Macromolecules 1997, 30, 7686)。この反応は、パ ラジウム系触媒、例えばPd(II)又はPd(0)の状態における可溶性Pd化合物と、塩基、例え ば水性無機アルカリ性炭酸塩又は重炭酸塩と、反応体及び/又は生成物のための溶剤を使 用することを伴う。好ましいPd触媒は、第3ホスフィン配位子を有するPd(0)錯体、例えば Pd(PPh₃)₄、又はPd(II)塩、例えばPd(PPh₃)Cl₂又はPd(OAc)₂であり、反応体の官能基に基 づいて、0.01~10モル%の範囲で使用される。極性溶剤、例えばTHF、及び非極性溶剤、例 えばトルエンを使用することができるが、しかし非極性溶剤は反応を遅くすると考えられ ている。芳香族ハロゲン化物と芳香族ホウ素誘導体とのスズキ・カップリングからELデバ イスのための共役ポリマーを調製するための改質プロセスが報告された(Inbasekaran, M 他、米国特許第5,777,070号(1998)明細書; Towns, C. R.他、国際公開第00/53656号(2000)パンフレット)。スズキ・カップリング反応の変更形は、芳香族ハロゲン化物の代わりに 、芳香族トリフルオロメタンスルホネート(トリフラート)を使用する(Ritter, K. Synthe sis, 1993, 735)。 芳香族トリフラートは、相応のフェノール誘導体から容易に調製され る。芳香族トリフラートを使用する利点は、フェノール誘導体が容易に入手可能であり、 複雑な合成中に保護/脱保護できることである。例えば芳香族ハロゲン化物は通常は、種 々のカップリング条件下で反応することにより、不所望の副産物を生成し、そして合成ス キームをより著しく複雑にしてしまう。しかし、フェノール誘導体は、官能基変換を妨害 することのない種々の保護基によって容易に保護することができ、そして、脱保護される ことによりフェノール基を発生し戻し、次いでこのフェノール基をトリフラートに変換す ることができる。二ホウ素誘導体は、対応する二ハロゲン化物又はジトリフラートから調 製することができる。

[0241]

本発明はまた、重合反応混合物を含む共役ポリマーの製造方法を提供する。重合反応混合物は、(a)2つ以上の反応性トリフラート基を有する芳香族モノマー、及びボロン酸、ボロン酸エステル又はボラン基から選択された2つ以上の反応性ホウ素誘導体基を有する芳香族モノマー、又は1つの反応性トリフラート基と、ボロン酸、ボロン酸エステル又はボラン基から選択された1つの反応性ホウ素誘導体基とを有する芳香族モノマー、(b)触媒量のパラジウム触媒、(c)有機又は無機塩基、及び(d)有機溶剤を含む。本発明の方法は、多分散性が比較的低く、分子量が高い共役ポリマーを、比較的短い反応時間で生成する。「共役ポリマー」という用語は、鎖の全長に沿って共役され、鎖に沿って非局在化pi電子系

20

30

40

50

を処理する完全共役ポリマー、或いは、共役セグメント及び非共役セグメントの双方を含有する部分共役ポリマーを意味する。

[0242]

本発明の共役ポリマーを形成するために使用される芳香族モノマーは、適切な官能基: すなわちトリフラート及びホウ素誘導体基を有さなければならない。芳香族又はアリール という用語は、芳香族環又は複素芳香族環に直接的に結合されたトリフラート基又はホウ 素誘導体基を有する任意のモノマーを意味する。この方法を用いることにより、2つの系 : すなわち1) 2つの反応性トリフラート基を含有するアリールジ-トリフラート・モノマ 一、及び2つの反応性ホウ素誘導体官能基を含有するアリールニホウ素モノマー;及び2) 反応性トリフラート官能基及び反応性ホウ素誘導体官能基の両方を含有するアリール・モ ノマー、を重合して線状ポリマーを形成することができる。本発明の方法を用いて分岐又 は高分岐ポリマーを調製するために、2つのモノマー系の場合には、両アリール・モノマ ーは、2つ以上の反応性トリフラート基又はホウ素誘導体基を含有しなければならず;1つ のモノマー系の場合には、モノマーは1つ以上のトリフラート基又はホウ素誘導体基と、2 つ以上の他方の基とを含有しなければならない。ホウ素誘導体官能基は、B(OH)クによって 表されるボロン酸基、B(0R₁₂)(0R₁₃)によって表されるボロン酸エステル基(上記式中、R₁ 2 は 炭 素 原 子 数 1~6の 置 換 型 又 は 無 置 換 型 ア ル キ ル 基 で あ り 、 R₁₃ は 水 素 で あ る か 或 い は 炭 素原子数1~6の置換型又は無置換型アルキル基であり、そしてR_{1.2}及びR_{1.3}は同じ又は異な るものであり、そしてR₁っ及びR₁₃を結合することにより、環状ボロン酸エステル、好まし くは5-又は6-員環を形成することができる);及びBR₁₄R₁₅によって表されるボラン基(上 記式中、R₁₄及びR₁₅はそれぞれ炭素原子数1~20の置換型及び無置換型アルキル基である) から選択される。ホウ素誘導体基は、好ましくはボロン酸基又は環状ボロン酸エステル基 である。モノマーの混合物を使用してポリマーを調製することにより、所望の特性及びア ーキテクチャを有するコポリマーを形成することができる。線状ポリマーを調製するため に、重合系は好ましくは、ほぼ等しいモル・パーセントの反応性トリフラート基及び反応 性ホウ素誘導体基を含む。これらの2つの反応性基クラスのモル比は、好ましくは0.98~1 .10、より好ましくは1.05未満、最も好ましくは1.00である。所望の場合には、単官能価 のトリフラート又はホウ素誘導体を使用することにより、鎖末端をエンドキャップするこ とができる。

[0243]

モノマーのためのアリール基の一例としては、芳香族炭化水素、例えばフェニル、ナフチル、アントラセン、フルオレン、ベンゾフルオレン、ジベンゾフルオレン、フェナントレン、ペリレン、ピレン、ルブレン、クリセン、テトラセン、ペンタセン、トリフェニレン、ジフェニルアントラセン、ジナフチルアントラセン、及びベンゾ[a]ピレン;及び複素芳香族基、例えばチオフェン、ピロール、フラン、ピリジン、トリアジン、テトラゼン、オキサゾール、イミダゾール、オキサジアゾール、ベンゾオキサゾール、キノリン、ベンズイミダゾール、カルバゾール、ベンゾチアゾール、及びアクリジン;及びトリアリールアミン、例えばトリフェニルアミン、ジナフチルフェニルアミン、及びN,N'-ジフェニルベンジジンが挙げられる。好ましくは、アリール基は、フルオレン、ベンゾフルオレン、ジフェニルアントラセン、ジナフチルアントラセン、チオフェン、オキサジアゾール、ベンゾチアゾール、ベンズイミダゾール及びカルバゾールから選択される。

[0244]

本発明の方法において使用するのに適した塩基は、無機水性塩基、例えばアルカリ金属水酸化物、炭酸塩、酢酸塩及び重炭酸塩、アルカリ土類金属水酸化物、炭酸塩、酢酸塩及び重炭酸塩、アルカリ土類金属アルコキシド、及びアルカリ金属アルコキシド、及び有機塩基、例えばヒドロキシル・イオン源、及びルイス塩基、例えば水の存在においてヒドロキシル・イオン源を形成する塩基を含む。有機塩基は有機溶剤及び/又は水中に可溶性であるべきである。水性無機塩基の例は、リチウム、ナトリウム、カリウム、セシウム及びバリウムの水酸化物、炭酸塩及び重炭酸塩を含む。好ましくは、水性塩基は、1~2Mの濃

20

30

40

50

度の炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、又は炭酸セシウムの溶液である。有機塩基の例は、アルキルアンモニウムの水酸化物、炭酸塩、重炭酸塩、フッ化物、及びホウ酸塩、ピリジン、有機アミンを含む。好ましくは、本発明の方法において使用される有機塩基は、テトラアルキルアンモニウムの水酸化物、炭酸塩、重炭酸塩、例えばテトラメチルアンモニウム、テトラエチルアンモニウム、又はテトラプロピルアンモニウムの水酸化物、炭酸塩及び重炭酸塩である。この方法において使用される塩基の量は、塩基のモル数がモノマーのモル数と等しいか又はこれを上回る限り、特に重要ではない。好ましくはホウ素誘導体官能基1つ当たり、1~10モル当量の塩基が採用される。より好ましくは、1~5モル当量の塩基が使用される。最も好ましくは、1.5~4モル当量、具体的には1.8~2.5モル当量の塩基が使用される。本発明の方法には、単独の塩基又は種々異なる塩基の混合物を使用することができる。

[0245]

本発明の方法に使用される触媒は、好ましくは配位子を有するPd(0)又はPd(II)錯体の 形態のパラジウム触媒、又はPd(II)塩である。パラジウム錯体に好適な配位子の例は、ホ スフィン、例えばトリアルキルホスフィン、トリシクロアルキルホスフィン、及びトリア リールホスフィンである。リン上の3つの置換基は同じ又は異なるものであってよく、そ して配位子のうちの1つ又は2つ以上は、複数のホスフィンから成るリン基と結合すること ができる。この結合の一部は1つ又は2つ以上の金属原子、ジケトン、例えばジベンジリデ ンアセトン(dba)、アセチルアセトン、及びオクタフルオロアセチルアセトン、及び第3ア ミン、例えばトリエチルアミン、トリメチルアミン、トリプロピルアミンであってもよい 。これらの配位子は、カチオン基又はアニオン基の結合によって誘導体化することにより 、水溶性にすることができる。2種以上の配位子の混合物を使用することもできる。本発 明の方法において使用されるホスフィン配位子の具体例は、トリメチルホスフィン、トリ ブチルホスフィン、トリシクロヘキシルホスフィン、トリトリホスフィン、1,2-ビス(ジ フェニルホスフィノ)エタン、トリフェニルホスフィン、1,3-ビス(ジフェニルホスフィノ)プロパン、及び1,1'-(ジフェニルホスフィノ)フェロセン(dppf)である。好ましくは、配 位子は、トリフェニルホスフィン(PhaP)、1,1'-(ジフェニルホスフィノ)フェロセン(dppf)、1,2-ビス(ジフェニルホスフィノ)エタン、1,3-ビス(ジフェニルホスフィノ)プロパン であり、より好ましくは、トリフェニルホスフィン(PhaP)、及び1,1'-(ジフェニルホスフ ィノ)フェロセン(dppf)である。最も好ましいPd(0)錯体は、Ph(Ph₃P)4である。好ましいP d(II)塩は、酢酸パラジウム、プロピオン酸パラジウム(II)、ブタン酸パラジウム(II)、 及び塩化パラジウム(II)であり、より好ましいPd(II)塩は酢酸パラジウム(II)である。パ ラジウム(II)塩を使用する場合には、反応混合物に、Pd塩1モル当たり2~4モル当量の他 の配位子、例えばPh3P又はdppfを添加することが有利である。Pd(II)錯体、例えばPdC1。(PPha),、ビス(アセトニトリル)パラジウムジクロリド、ジクロロビス(ジメチルスルホキ シド)パラジウム(II)、ビス(ベンゾニトリル)パラジウムジクロリド、又はPdC1,(dppf)を その代わりに使用することができる。パラジウム触媒は、支持材料、例えば不活性有機樹 脂上に位置することもできる。典型的には、反応混合物中に使用されるパラジウム触媒の 量は、モノマー1モルにつき0.001~1モル%、好ましくはモノマー1モルにつき0.01~1モル %である。

[0246]

この方法における使用に適した有機溶剤は、1%以上、好ましくは2%以上の溶液濃度までモノマーを溶解することができる溶剤を含む。記載の方法に適した溶剤の例は、炭化水素、例えばヘキサン、ヘプタン、石油エーテル、シクロヘキサン、ベンゼン、クロロベンゼン、エチルベンゼン、メシチレン、トルエン及びキシレン、エーテル、例えばアニソール、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、ジオキソラン、ジイソプロピルエーテル、ジメトキシエタン、t-ブチルメチルエーテル及びジエチレングリコール、ジメチルエーテル、ケトン、例えばアセトン、メチルエチルケトン、及びイソブチルメチルケトン、アルコール、例えばメタノール、エタノール、プロパノール、エチレングリコール、及びブタノール、及びアミド、例えばジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド及

20

30

40

50

びN-メチルピロリドン、及びこれらのフッ素処理類似体、及びこれらの混合物である。

[0247]

好ましい有機溶剤は、その中でポリマーが可溶性の1つの溶剤を含む。好ましい溶剤の例は、エーテル、例えばテトラヒドロフラン、ジオキサン、ジメチルオキシエタン、ジエチレングリコールジメチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、炭化水素、例えばベンゼン、クロロベンゼン、トルエン、キシレン、ヘプタン、及びシクロヘキサン、ケトン、例えばメチルエチルケトン及びイソブチルメチルケトン、アミド、例えばジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド及びN-メチルピロリドン、及びこれらの混合物である。

[0248]

より好ましい有機溶剤は、エーテル、例えばテトラヒドロフラン、ジメチルオキシエタン及びジオキサン、炭化水素、例えばトルエン、クロロベンゼン及びキシレン、並びにアミド、及び例えばジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミドである。

[0249]

本発明の方法の最も好ましい有機溶剤は、1種又は2種以上の水不溶性溶剤、例えばトルエン又はキシレン又はテトラヒドロフラン、又はこれらの混合物である。本発明の方法の溶剤の容積は、反応混合物がポリマー分子量の形成とともにより粘性になってくるのに伴って、効率的な混合及び撹拌を行うためのレベルに維持されるべきである。

[0250]

重合反応混合物は、米国特許第5,777,070号明細書に開示された相間移動触媒を含有することもできる。本発明の方法において使用される好適な相間移動触媒は、第四アンモニウム及びホスホニウム塩、クラウンエーテル及びクリプタンドを含む。好ましくは相間移動触媒は、テトラアルキルアンモニウムハロゲン化物又は重硫酸塩である。最も好ましい相間移動触媒の例は、塩化テトラブチルアンモニウム及び塩化トリカプリリルアンモニウム(Aldrich Chemical製のAliquat (登録商標)として知られている)である。相間移動触媒の好ましい範囲は、モノマー1モル当たり $0.01\sim0.5$ モル、より好ましくはモノマー1モル当たり $0.05\sim0.1$ モルである。

[0251]

重合反応は、 $0\sim200$ $^{\circ}$ 、好ましくは $30\sim170$ $^{\circ}$ 、より好ましくは $50\sim150$ $^{\circ}$ 、及び最も好ましくは $60\sim120$ $^{\circ}$ の温度で行われる。反応時間は $1\sim100$ 時間、好ましくは $5\sim70$ 時間、より好ましくは $5\sim50$ 時間、そして最も好ましくは $5\sim48$ 時間である。

[0252]

本発明の方法は、反応性官能基のいくつか又は全てが芳香族環に直接的には結合されないようなモノマー、特に他の種類の不飽和型モノマーを使用することにまで範囲を広げることができる。

[0253]

本発明による化合物の合成スキームをスキーム1~11に示す。

[0254]

本発明の方法は、光学デバイスに特に有用な共役ポリマーを提供する。光学デバイスは、ルミネセント・デバイス、例えばELデバイスであって、本発明のポリマー又は低分子が、カソードとアノードとの間にデポジットされるデバイスを含むことができる。ポリマー又は低分子又はこれらの組み合わせは、蒸着法によって薄膜としてデポジットするか、或いは、スピン・コーティング、スプレー・コーティング、浸漬コーティング、ローラー・コーティング又はインクジェット供給によって溶液からデポジットすることができる。薄膜は、基板、好ましくは透明基板によって直接的に支持することができ、或いは、基板によって間接的に支持することもできる。をは2つ以上の中間層が設けられる。薄膜は、発光層又は電荷担体輸送層として使用することもできる。

[0255]

一般的なデバイス・アーキテクチャ:

本発明は、大抵の有機ELデバイス形態に採用することができる。これらの形態は、単一

のアノード及びカソードを含む極めてシンプルな構造から、より複雑なデバイス、例えば画素を形成するためのアノード及びカソードの直交アレイから成るパッシブ・マトリックス・ディスプレイ、そしてそれぞれの画素が例えば薄膜トランジスター(TFT)によって独立して制御されるアクティブ・マトリックス・ディスプレイまでを含む。

[0256]

本発明をうまく実施することができる、数多くの有機層形態がある。典型的な構造が図1に示されており、この構造は基板101、アノード103、正孔注入層105、正孔輸送層107、発光層109、電子輸送層111、及びカソード113を含む。これらの層に関しては下記に詳しく説明する。この図面は一例を挙げるために示したにすぎず、個々の層厚は、実際の厚さに応じて定めたものではない。なお、基板はこの代わりに、カソードに隣接して配置されてよく、或いは、基板はアノード又はカソードを実際に構成してもよい。アノードとカソードとの間の有機層は便宜上、有機EL素子と呼ばれる。また、有機層の総複合厚は好ましくは500nm未満である。

[0257]

OLEDのアノード及びカソードは、電気的な導体260を介して電源250に接続されている。アノードがカソードよりも正電位であるように、アノードとカソードとの間に電位を加えることにより、OLEDは作動される。正孔はアノードから有機EL素子内に注入され、そして電子はアノードで有機EL素子内に注入される。OLEDがACモードで作動され、この場合、サイクル中の所定の時間にわたって電位バイアスが逆になり、電流が流れない場合、デバイス安定性を高めることができる場合がある。AC駆動型OLEDの一例が米国特許第5,552,678号明細書に記載されている。

[0258]

基板

本発明のOLEDデバイスは典型的には支持基板101に被せられ、カソード又はアノードは基板と接触することができる。基板と接触する電極は便宜上、下側電極と呼ばれる。便宜上、下側電極はアノードであるが、しかし本発明はそのような形態に限定されるもので透いない。基板は、意図される発光方向に応じて、光透過性又は不透明であってよい。光透過特性は、基板を通してEL発光を見るのに望ましい。透明ガラス又はプラスチックがこのような場合に一般に採用される。基板は、多重の材料層を含む複合構造であってよい。これは一般に、EL層の下方にTFTが設けられるアクティブ・マトリックス基板に当てはまる。基板が少なくとも発光画素化領域において、概ね透明な材料、例えばガラス又はポリマから成ることが依然として必要である。上側電極を通してEL発光が見られる用途の場合、下側支持体の透過特性は重要でなく、従って、光透過性、光吸収性又は光反射性であって側支持体の透過特性は重要でなく、従って、光透過性、光吸収性又は光反射性であって側支持体の透過特性は重要でなく、従って、光透過性、光吸収性又は光反射性であって側支持体の透過特性は重要でなく、で、光透過性、光吸収性又は光反射性であって単導体材料、シリコン、セラミックス及び回路基板材料が挙げられる。この場合もやはり、基板は、アクティブ・マトリックスTFTデザインに見いだされるような材料から成る多重層を含む複合構造であってもよい。もちろん、このようなデバイス形態において、光透過性上側電板を設けることが必要である。

[0259]

アノード:

EL発光がアノード103を通して見られる場合、アノードが当該発光を通すか又は実質的に通すべきである。本発明において使用される一般的な透明アノード材料は、インジウム-錫酸化物(IT0)、インジウム-亜鉛酸化物(IT0)、及び酸化錫であるが、しかしその他の金属酸化物、例えばアルミニウム又はインジウム・ドープ型酸化錫、マグネシウム-インジウム酸化物、及びニッケル-タングステン酸化物も役立つ。これらの酸化物に加えて、金属窒化物、例えば窒化ガリウム、金属セレン化物、例えばセレン化亜鉛、及び金属硫化物、例えば硫化亜鉛をアノード103として使用することができる。アノードは、プラズマ蒸着されたフルオロカーボンで改質することができる。カソード電極を通してだけEL発光が見られる用途の場合、アノードの透過特性は重要ではなく、透明、不透明又は反射性の任意の導電性材料を使用することができる。この用途のための導体の一例としては、金、イ

10

20

30

リジウム、モリブデン、パラジウム及び白金が挙げられる。透過性又はその他の典型的なアノード材料は、4.1 eV以上の作業機能を有している。任意の好適な手段、例えば蒸発、スパッタリング、化学気相堆積、又は電気化学手段によって、所望のアノード材料が一般にデポジットされる。よく知られたフォトリソグラフィ法によって、アノードをパターン化することができる。任意には、その他の層の塗布前にアノードを研磨することにより、表面粗さを低減して短絡を最小化するか又は反射性を高めることができる。

[0260]

正孔注入層(HIL):

必ずしも必要というわけではないが、アノード103と正孔輸送層107との間に正孔注入層105が設けられることがしばしば有用である。正孔注入材料は、後続の有機層の膜形成特性を改善し、そして正孔輸送層内に正孔を注入するのを容易にするのに役立つことができる。正孔注入層内で使用するのに適した材料の一例としては、米国特許第4,720,432号明細書に記載されているようなポルフィリン化合物、米国特許第6,208,075号明細書に記載されているようなプラズマ蒸着型フルオロカーボン・ポリマー、及びいくつかの芳香族アミン、例えばm-MTDATA(4,4',4''-tris[(3-メチルフェニル))フェニルアミノ]トリフェニルアミン)が挙げられる。欧州特許出願公開第0891121号明細書及び同第1029909号明細書に記載された別の正孔注入材料が、有機ELデバイスにおいて有用であることが報告されている。

[0261]

正孔輸送層(HTL)

有機ELデバイスの正孔輸送層107は、1種以上の正孔輸送化合物、例えば芳香族第三アミンを含有する。芳香族第三アミンは、1つ以上の三価窒素原子を含有する化合物であることを意味し、この三価窒素原子は炭素原子だけに結合されており、これらの炭素原子の1つ以上が芳香族環の員である。1形態において、芳香族第三アミンは、アリールアミン、例えばモノアリールアミン、ジアリールアミン、トリアリールアミン、又は高分子アリールアミンであってよい。モノマー・トリアリールアミンの例が、K1upfel他の米国特許第3,180,730号明細書に示されている。1つ又は2つ以上のビニル基と置換され、且つ/又は1つ以上の活性水素含有基を含むその他の好適なトリアリールアミンが、Brantley他の米国特許第3,567,450号明細書及び同第3,658,520号明細書に開示されている。

[0262]

芳香族第三アミンのより好ましいクラスは、米国特許第4,720,432号明細書及び同第5,061,569号明細書に記載されているような2種以上の芳香族第三アミン部分を含むアミンである。このような化合物は、構造式(A):

[0263]

【化112】

 Q_{1} G' Q_{2}

(A)

40

10

20

30

[0264]

によって表される化合物を含み、上記式中、 Q_1 及び Q_2 は独立して選択された芳香族第三アミン部分であり、Gは結合基、例えば炭素-炭素結合のアリーレン、シクロアルキレン又はアルキレン基である。1実施態様の場合、 Q_1 及び Q_2 の少なくとも一方は、多環式縮合環構造、例えばナフタレンを含有する。Gがアリール基である場合、Gはフェニレン、ビフェニレン又はナフタレン部分であると好都合である。

[0265]

構造式(A)を満たし、そして2つのトリアリールアミン部分を含有するトリアリールアミンの有用なクラスが、構造式(B):

[0266]

【化113】

$$R_{18} - \overset{R_{15}}{\overset{1}{\underset{R_{17}}{\subset}}} R_{16}$$
(B)

10

[0267]

によって表され、上記式中:

 R_{15} 及び R_{16} はそれぞれ独立して水素原子、アリール基又はアルキル基を表し、或いは、 R_{15} と R_{16} とは結合して、シクロアルキル基を完結する原子を表し;そして

R₁₇及びR₁₈はそれぞれ独立してアリール基を表し、このアリール基は構造式(C):

[0268]

【化114】



30

20

[0269]

によって示されるように、ジアリール置換型アミノ基と置換されており、上記式中、 R_{19} 及び R_{20} は独立して選択されたアリール基である。1実施態様の場合、 R_{19} 又は R_{20} の少なくとも一方は、多環式縮合構造、例えばナフタレンを含有する。

[0270]

芳香族第三アミンの別のクラスが、テトラアリールジアミンである。望ましいテトラアリールジアミンは、アリーレン基を介して結合された、式(C)によって示されたような2つのジアリールアミノ基を含む。有用なテトラアリールジアミンは、式(D):

[0271]

【化115】

40

$$\begin{array}{c}
R_{21} \\
Ar_4
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
N - \left[Ar_3\right]_t \\
R_{23}
\end{array}$$

$$\begin{array}{c}
R_{22} \\
R_{23}
\end{array}$$

[0272]

によって表されるものを含み、上記式中:

各 Ar_3 は、独立して選択されたアリーレン基、例えばフェニレン又はアントラセン部分であり、

tは1~4の整数であり、そして

 Ar_4 、 R_{21} 、 R_{22} 及び R_{23} は独立して選択されたアリール基である。

[0273]

典型的な実施態様の場合、 Ar_4 、 R_{21} 、 R_{22} 及び R_{23} のうちの少なくとも1つが、多環式縮合環構造、例えばナフタレンである。

[0274]

前記構造式(A)、(B)、(C)、(D)の種々のアルキル、アルキレン、アリール及びアリーレン部分はそれぞれ置換することができる。典型的な置換基は、アルキル基、アルコキシ基、アリール基、アリールオキシ基、及びハロゲン、例えばフッ化物、塩化物及び臭化物を含む。種々のアルキル部分及びアルキレン部分の典型的な炭素原子数は約1~6である。シクロアルキル部分の炭素原子数は3~約10であってよいが、しかし、シクロアルキル部分は環内炭素原子数が典型的には、5、6又は7であり、例えばシクロペンチル、シクロヘキシル及びシクロヘプチル環構造を含有する。アリール及びアリーレン部分は普通、フェニル及びフェニレン部分である。

[0275]

正孔輸送層は、単独の芳香族第三アミン化合物、又は複数の芳香族第三アミン化合物の混合物から形成することができる。具体的には、トリアリールアミン、例えば式(B)を満たすトリアリールアミンを、式(D)によって示されるようなテトラアリールジアミンとの組み合わせで採用することができる。トリアリールアミンがテトラアリールジアミンとの組み合わせで採用される場合、テトラアリールジアミンは、トリアリールアミンと電子注入・輸送層との間に挿入された層として配置される。有用な芳香族第三アミンの例を下記に示す:

1,1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン

1,1-ビス(4-ジ-p-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン

4,4'-ビス(ジフェニルアミノ)クワドリフェニル

ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)-フェニルメタン

4-(ジ-p-トリルアミノ)-4'-[4(ジ-p-トリルアミノ)-スチリル]スチルベン

N,N,N',N'-テトラ-p-トリル-4-4'-ジアミノビフェニル

N,N,N',N'-テトラフェニル-4-4'-ジアミノビフェニル

N,N,N',N'-テトラ-1-ナフチル-4-4'-ジアミノビフェニル

N,N,N',N'-テトラ-2-ナフチル-4-4'-ジアミノビフェニル

N-フェニルカルバゾール

4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-(2-ナフチル)アミノ]ビフェニル

4,4''-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]p-ターフェニル

4,4'-ビス[N-(2-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

4,4'-ビス[N-(3-アセナフテニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

1,5-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ナフタレン

4,4'-ビス[N-(9-アントリル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

4,4''-ビス[N-(1-アントリル)-N-フェニルアミノ]-p-ターフェニル

4,4'-ビス[N-(2-フェナントリル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

4,4'-ビス[N-(8-フルオルアンテニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

4,4'-ビス[N-(2-ピレニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

4,4'-ビス[N-(2-ナフタセニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

4,4'-ビス[N-(2-ペリレニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

4,4'-ビス[N-(1-コロネニル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル

10

20

30

20

30

40

50

2,6-ビス(ジ-p-トリルアミノ)ナフタレン

2,6-ビス[ジ-(1-ナフチル)アミノ]ナフタレン

2,6-ビス[N-(1-ナフチル)-N-(2-ナフチル)アミノ]ナフタレン

N,N,N',N'-テトラ(2-ナフチル)-4-4'-ジアミノ-p-ターフェニル

4,4'-ビス {N-フェニル-N-[4-(1-ナフチル)-フェニル]アミノ} ビフェニル

4.4'-ビス「N-フェニル-N-(2-ピレニル)アミノ]ビフェニル

2,6-ビス[N,N-ジ(2-ナフチル)アミン)フルオレン

1,5-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ナフタレン

4.4',4''-トリス「(3-メチルフェニル)フェニルアミノ]トリフェニルアミン。

[0276]

有用な正孔輸送材料の別のクラスは、欧州特許第1009041号明細書に記載された多環式 芳香族化合物を含む。オリゴマー材料を含めて、3つ以上のアミン基を有する第三芳香族 アミンを使用することができる。加えて、高分子正孔輸送材料、例えばポリ(N-ビニルカルバゾール)(PVK)、ポリチオフェン、ポリピロール、ポリアニリン(Yang, Y.他、Appl. Phys. Lett. 1994, 64, 1245)、及びコポリマー、例えばPEDOT/PSSとも呼ばれるポリ(3,4-エチレンジオキシチオフェン)/ポリ(4-スチレンスルホネート)を使用することができる(Groenendaal, L.B.他、Adv. Mater. 2000, 12, 481)。

[0277]

発光層(LEL)

同一譲受人による米国特許第4,769,292号明細書及び同第5,935,721号明細書により十分 に記載されているように、有機EL素子の発光層(LEL)109は、ルミネセント材料又は蛍光材 料を含み、この場合、この領域で電子・正孔対が再結合された結果としてエレクトロルミ ネセンスが生成される。発光層は、低分子及びポリマー双方を含む単一材料から成ってい てよいが、しかし、より一般的には、ゲスト化合物でドーピングされたホスト材料から成 っており、この場合、発光は主としてドーパントから生じ、そして任意の色を有すること ができる。発光層内のホスト材料は、下記に定義する電子輸送材料、上記に定義する正孔 輸送材料、又は正孔・電子再結合をサポートする別の材料又は材料の組み合わせであって よい。ドーパントは通常、高蛍光色素から選択されるが、しかし、燐光化合物、例えば国 際公開第98/55561号、同第00/18851号、同第00/57676号、及び同第00/70655号の各パンフ レットに記載されている遷移金属錯体も有用である。同時に、ELデバイスの色は、種々異 なる発光波長のドーパントを使用して整調することができる。ドーパントの混合物を使用 することにより、個々のドーパントの複合スペクトルのEL色特性が生成される。このドー パント・スキームは、蛍光色素に関する同一譲受人による米国特許第4,769,292号明細書 中に、ELデバイスに関してかなり詳しく記載されている。ドーパントは典型的には、ホス ト材料中0.01~10重量%でコーティングされる。高分子材料、例えばポリフルオレン及び ポリ(アリーレンビニレン)(例えばポリ(p-フェニレンビニレン)、PPV)をホスト材料とし て使用することもできる。この場合、高分子ホスト中に低分子ドーパントを分子分散させ ることができ、或いは、ホスト・ポリマー中に微量成分を共重合することにより、ドーパ ントを添加することもできる。

[0278]

色素をドーパントとして選択するための重要な関係が、分子の最高被占分子軌道(HOMO)と最低空分子軌道(LUMO)との間のエネルギー差として定義されるバンドギャップ電位の比較である。ホストからドーパント分子への効率的なエネルギー転移のために、ドーパントのバンドギャップがホスト材料よりも小さいことが必要な条件である。燐光エミッターの場合、ホストのホスト三重項エネルギー・レベルが、ホストからドーパントへのエネルギー転移を可能にするのに十分に高いことも重要である。

[0279]

低分子の場合、使用可能であることが知られているホスト及び発光分子の一例としては、米国特許第4,768,292号;同第5,141,671号;同第5,150,006号;同第5,151,629号;同第5,405,709号;同第5,484,922号;同第5,593,788号;同第5,645,948号;同第5,683,823号

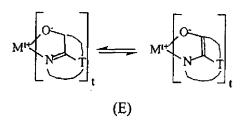
;同第5,755,999号;同第5,928,802号;同第5,935,720号;同第5,935,721号及び同第6,02 0,078号の明細書に開示されたものが挙げられる。

[0280]

例えば、8-ヒドロキシキノリン及び同様の誘導体(式E)の低分子金属錯体は、エレクト ロルミネセンスをサポートすることができる有用なホスト化合物の1つのクラスを構成し 、500nmを上回る波長の発光、例えば緑、黄、橙及び赤に特に適している。

[0281]

【化116】



[0282]

上記式中:

Mは金属を表し;

tは1~4の整数であり;そして

Tはそれぞれの出現において独立して、2つ以上の縮合芳香族環を有する核を完結する原 子を表す。

[0283]

前記から、金属が一価、二価、三価、又は四価金属であり得るのが明らかである。金属 は例えば、アルカリ金属、例えばリチウム、ナトリウム、又はカリウム;アルカリ土類金 属、例えばマグネシウム又はカルシウム;土類金属、例えばアルミニウム又はガリウム、 又は遷移金属、例えば亜鉛又はジルコニウムであってよい。一般に、有用なキレート金属 であることが知られている任意の一価、二価、三価、又は四価金属を採用することができ る。

[0284]

Tは、2つ以上の縮合芳香族環を含有する複素環式核を完結し、これらの環の少なくとも 一方はアゾール又はアジン環である。脂肪族環及び芳香族環の双方を含む付加的な環は、 必要な場合には2つの所要環と縮合することができる。機能を改善することなしに分子バ ルクを添加することを回避するために、環内原子数は通常18以下に維持される。

[0285]

有用なキレート化されたオキシノイド化合物の例は下記の通りである:

CO-1:アルミニウムトリスオキシン[別名トリス(8-キノリノラト)アルミニウム(III)]

CO-2:マグネシウムビスオキシン[別名ビス(8-キノリノラト) マグネシウム(II)]

CO-3: ビス「ベンゾ {f} -8-キノリノラト] 亜鉛(II)

C0-4: ビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III)-μ-オキソ-ビス(2-メチル-8 -キノリノラト)アルミニウム(III)

C0-5:インジウムトリスオキシン[別名トリス(8-キノリノラト)インジウム]

CO-6:アルミニウムトリス(5-メチルオキシン)[別名トリス(5-メチル-8-キノリノラト) アルミニウム(III)]

CO-7: リチウムオキシン [別名(8-キノリノラト)リチウム(I)]

CO-8: ガリウムオキシン 「別名トリス (8-キノリノラト) ガリウム (III)]

CO-9: ジルコニウムオキシン[別名テトラ(8-キノリノラト)ジルコニウム(IV)]

10

20

30

40

9,10-ジ-(2-ナフチル)アントラセンの誘導体(式 F)は、エレクトロルミネセンスをサポートすることができる有用なホストの1つのクラスを構成し、400nmを上回る波長の発光、例えば青、緑、黄、橙及び赤に特に適している。

[0286]

【化117】

$$R_{27}$$
 R_{26}
 R_{25}
 R_{24}
 R_{29}
 R_{29}
 R_{29}
 R_{29}

[0287]

20

上記式中、 R_{24} 、 R_{25} 、 R_{26} 、 R_{27} 、 R_{28} 及び R_{29} は、各環上の1つ又は2つ以上の置換基を表し、各置換基は独立して、下記群から選択される:

グループ1:水素、又は炭素原子数1~24のアルキル;

グループ2:炭素原子数5~20のアリール又は置換型アリール;

グループ3:アントラセニル;ピレニル又はペリレニルの縮合芳香族環を完結するのに必要な4~24個の炭素原子

グループ4:フリル、チエニル、ピリジル、キノリニル又はその他の複素環式系の縮合 複素芳香族環を完結するのに必要な炭素原子5~24のヘテロアリール又は置換型ヘテロア リール;

グループ5: 炭素原子数1~24のアルコキシアミノ、アルキルアミノ又はアリールアミノ 30; 及び

グループ6:フッ素、塩素、臭素又はシアノ。

[0288]

ー例としては、9,10-ジ-(2-ナフチル)アントラセン及び2-t-ブチル-9,10-ジ-(2-ナフチル)アントラセンが挙げられる。他のアントラセン誘導体は、9,10-ビス[4-(2,2-ジフェニルエテニル)フェニル]アントラセンの誘導体を含めて、LFL中のホストとして有用であり得る。

[0289]

ベンザゾール誘導体(式G)はエレクトロルミネセンスをサポートすることができる有用なホストの1つのクラスを構成し、400nmを上回る波長の発光、例えば青、緑、黄、橙及び 40赤に特に適している。

[0290]

【化118】

$$Z_{2}$$
 R_{30}
 t_{1}
 R_{30}

10

[0291]

上記式中、

t₁は3~8の整数であり;

Z,はO、NR3,又はSであり;そして

 R_{30} 及び R_{31} は独立して水素;炭素原子数 $1\sim24$ のアルキル、例えばプロピル、t-ブチル及びヘプチルなど;炭素原子数 $5\sim20$ のアリール又はヘテロ原子置換型アリール、例えばフェニル及びナフチル、フリル、チエニル、ピリジル、キノリニル及びその他の複素環式系;又はハロ、例えばクロロ、フルオロ;又は縮合芳香族環を完結するのに必要な原子であり;

20

30

40

 Z_2 は、複数のベンザゾールを一緒に共有結合又は非共有結合するアルキル、アリール、置換型アルキル、又は置換型アリールから成る結合単位である。有用なベンザゾールの一例は、 Z_1 , Z_2 , Z_3 , Z_4 , Z_5 ,

[0292]

米国特許第5,121,029号明細書に記載されているように、ジスチリルアリーレン誘導体 も有用なホストである。カルバゾール誘導体は燐光エミッターのための特に有用なホスト である。

[0293]

式(E)、(F)及び(G)によって表された上記小分子部分を組み込んだポリマーが有用なホスト材料である。9,10-ジ-(2-ナフチル)アントラセン含有ポリマーの一例が米国特許第6,361,887号明細書に開示されている。

[0294]

有用な蛍光ドーパント(FD)の一例としては、アントラセン、テトラセン、キサンテン、ペリレン、ルブレン、クマリン、ローダミン及びキナクリドン、ジシアノメチレンピラン化合物、チオピラン化合物、ポリメチン化合物、ピリリウム及びチアピリリウム化合物、フルオレン誘導体、ペリフランテン誘導体、インデノペリレン誘導体、ビス(アジニル)アミンホウ素化合物、ビス(アジニル)メタン化合物、及びカルボスチリル化合物が挙げられる。有用な燐光ドーパント(PD)の一例としては、イリジウム、白金、パラジウム又はオスミウムの遷移金属の有機金属錯体が挙げられる。有用なドーパントの一例としては、下記のものが挙げられる:

[0295]

【化119】

$$FD 1 R = H$$

FD 2 $R = CO_2Pr-i$

FD 3
$$R = H$$
, $R' = t-Bu$

FD 4
$$R = R' = t-Bu$$

FD 5

FD 6

[0296]

10

20

30

【化120】

FD 7

10

FD 8 R = R' = H

FD 9 R = Me, R' = H

FD 10 R = Pr-i, R' = H

FD 11 R = Me, R' = F

FD 12 R =フェニル, R' =H

20

[0297]

【化121】

FD 13
$$R = R' = H, X = O$$

FD 14 R = H, R' = Me, X = O

FD 15 R = Me, R' = H, X = O

FD 16 $R = \dot{M}e, R' = Me, X = O$

FD 17 R = H, R' = t-Bu, X = O

FD 18 R = t-Bu, R' = H, X = O

FD 19 R = R' = t-Bu, X = 0

FD 20 R = R' = H, X = S

FD 21 R = H, R' = Me, X = S

FD 22 R = Me, R' = H, X = S

FD 23 R = Me, R' = Me, X = S

FD 24 R = H, R' = t-Bu, X = S

FD 25 R = t-Bu, R' = H, X = S

FD 26 R = R' = t-Bu, X = S

30

20

10

[0298]

【化122】

FD 27
$$R = R' = H, X = O$$

FD 28 R = H, R' = Me, X = O

FD 29
$$R = Me, R' = H, X = O$$

FD 30
$$R = Me, R' = Me, X = O$$

FD 31
$$R = H, R' = t-Bu, X = O$$

FD 32
$$R = t-Bu, R' = H, X = O$$

FD 33
$$R = R' = t-Bu, X = O$$

FD 34
$$R = R' = H, X = S$$

FD 35
$$R = H, R' = Me, X = S$$

FD 36
$$R = Me, R' = H, X = S$$

FD 37
$$R = Me, R' = Me, X = S$$

FD 38
$$R = H, R' = t-Bu, X = S$$

FD 39
$$R = t-Bu, R' = H, X = S$$

FD 40
$$R = R' = t-Bu, X = S$$

30

10

20

[0299]

【化123】

FD 41 R = フェニル

FD 42 R = Me

FD 43 R = t-Bu

FD 44 R = メシチル

FD 45 R=フェニル

FD 46 R = Me

FD 47 R = t-Bu

FD 48 R = メシチル

[0300]

30

20

【化124】

FD 49

FD 50

FD 51

FD 52

[0301]

10

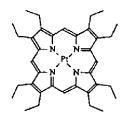
20

【化125】

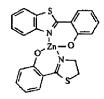
FD 53



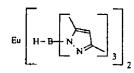
PD 1



PD 2



PD 3



PD 4

[0302]

電子輸送層(ETL):

本発明の有機ELデバイスの電子輸送層111を形成するのに使用するための好ましい薄膜 形成材料は、オキシン自体のキレート(一般に8-キノリノール又は8-ヒドロキシキノリン とも呼ばれる)を含む金属キレート・オキシノイド化合物である。このような化合物は、 電子を注入して輸送するのを助け、高い両性能レベルを示し、そして薄膜の形態で容易に 製作される。考えられるオキシノイド化合物の例は、前述の構造式(E)を満たす化合物で

10

20

20

30

40

50

ある。

[0303]

他の電子輸送材料は、米国特許第4,356,429号明細書に開示された種々のブタジエン誘導体、及び米国特許第4,539,507号明細書に記載された種々の複素環式蛍光増白剤を含む。構造式(G)を満たすベンザゾールも、有用な電子輸送材料である。トリアジンが電子輸送材料として有用であることも知られている。低分子及びポリマーを含むオキサジアゾール化合物は、米国特許第6,451,457号明細書に記載された有用な電子輸送材料である。

[0304]

カソード:

発光がアノードを通してのみ見られる場合、本発明において使用されるカソード113は、ほぼ任意の導電性材料から形成することができる。望ましい材料は、下側に位置する有機層との良好な接触を保証し、低電圧での電子注入を促進し、そして良好な安定性を有するための良好な膜形成特性を備えている。有用なカソード材料はしばしば低作業機能(<4.0 eV)の金属又は合金を含有している。1つの好ましいカソード材料はMg:Ag合金から形成されており、銀のパーセンテージは、同一譲受人による米国特許第4,885,211号明細書に記載されているように、1~20%である。別の好適なカソード材料クラスは、有機層(例えばETL)と接触する薄い電子注入層(EIL)を含む二重層を含み、有機層は、より厚い導電性金属層でキャップされている。この場合EILは低作業機能の金属又は金属塩を含むことが好ましく、そしてもしそうであるならば、より厚いキャップ層は低作業機能を有する必要はない。1つのこのようなカソードは、米国特許第5,677,572号明細書に記載されているように、薄いLiF層と、これに続くより厚いAI層とから成っている。その他の有用なカソード材料集合の一例としては、同一譲受人による米国特許第5,059,861号明細書;同第5,059、862号明細書、及び同第6.140.763号明細書に開示されている材料集合である。

[0305]

発光がカソードを通してみられる場合、カソードは透明又はほぼ透明でなければならない。このような用途の場合、金属は薄くなければならず、或いは、透明な導電性酸化物又はこれらの材料の組み合わせを使用しなければならない。光学的に透明なカソードが、米国特許第4,885,211号;同第5,247,190号;同第5,703,436号;第5,608,287号;同第5,837,391号;同第5,677,572号;同第5,776,622号;同第5,776,623号;第5,714,838号;同第5,969,474号;同第5,739,545号;同第5,981,306号;同第6,137,223号;第6,140,763号;同第6,172,459号;同第6,278,236号;同第6,284,3936号;欧州特許第1076368号及び日本国特許第3,234,963号の各明細書に詳細に記載されている。カソード材料は典型的には、蒸発、スパッタリング又は化学気相堆積によってデポジットされる。必要な場合には、多くのよく知られた方法によってパターン化を達成することができる。これらの方法に一例としては、スルー・マスク・デポジション、米国特許第5,276,380号明細書及び欧州特許第0732868号明細書に記載されているインテグラル・シャドー・マスキング、レーザー・アブレーション、及び選択的化学気相堆積が挙げられる。

[0306]

他の有用な有機層及びデバイス・アーキテクチャ

いくつかの事例において、層109及び111を任意には合体して単層にすることができる。 この単層は発光及び正孔・電子輸送の双方をサポートするという機能を発揮する。或いは 、任意には層107,109及び111を合体して単層にすることができる。この単層は発光及び 正孔・電子輸送の双方をサポートするという機能を発揮する。これは本発明の好ましいEL デバイス構造であり、「単層」デバイスと呼ばれる。

[0307]

また当業者に知られているように、発光ドーパントを正孔輸送層に添加することができ、正孔輸送層はホストとして役立つことができる。複数のドーパントを1つ又は2つ以上の層に添加することにより、例えば青色発光材料と黄色発光材料との組み合わせ、シアン発光材料と赤色発光材料、又は赤色発光材料と緑色発光材料と青色発光材料との組み合わせにより、白色発光ELデバイスを形成することができる。白色発光デバイスは例えば欧州特

20

30

40

50

許第1187235号明細書、同第1182244号明細書、米国特許出願公開第20020025419号明細書、及び米国特許第5,683,823号明細書;同第5,503,910号明細書;同第5,405,709号明細書;及び同第5,283,182号明細書に記載されている。

[0308]

当業者に教示されているような付加層、例えば電子又は正孔をブロックする層を、本発明の装置において採用することができる。例えば米国特許出願公開第20020015859号明細書に記載されているように、正孔ブロック層は一般に、燐光エミッター・デバイスの効率を改善するために使用される。

[0309]

本発明は、例えば米国特許第5,703,436号明細書及び同第6,337,492号明細書において教示されているようないわゆるスタック型デバイス・アーキテクチャにおいて使用することができる。

[0310]

有機層のデポジション

上述の有機材料は、種々の方法、例えば蒸着又は昇華法、電子ビーム法、スパッタリング法、サーマル転写法、分子ラミネーション法及びコーティング法、例えば溶液流延法、スピン・コーティング又はインクジェット印刷によって高品質の透明な薄膜としてデポジットすることができる。この場合、膜形成を改善するために任意のバインダーが用いられる。材料がポリマーの場合には、溶剤デポジションが通常好ましい。昇華によってデポジットされるべき材料は、例えば米国特許第6,237,529号明細書に記載されているように、しばしばタンタル材料から成る昇華器「ボート」から蒸発させることができ、或いは、先ずドナーシート上にコーティングし、次いで基板により近接して昇華させることができる。材料混合物を有する層は、別個の昇華器ボートを利用することができ、或いは、これらの材料は予混合して、単一のボート又はドナーシートからコーティングすることもできる。シャドーマスク、インテグラル・シャドーマスク(米国特許第5,294,870号明細書)、空間的に画定された、ドナーシートからのサーマル色素転写(米国特許第5,688,551号明細書)、電書;同第5,851,709号明細書及び同第6,066,357号明細書)、及びインクジェット法(米国特許第6,066,357号明細書)を使用して、パターン化されたデポジションを達成することができる。

[0311]

好ましくは、本発明の有機材料をデポジットするために、スピン・コーティング又はインクジェット印刷技術が用いられ、1種の化合物だけが、単層デバイスにデポジットされる。

[0312]

カプセル化:

大抵の有機ELデバイスは湿分又は酸素、又はその両方に対して感受性を有するので、これらのデバイスは一般に不活性雰囲気、例えば窒素又はアルゴン中で、乾燥剤、例えばアルミナ、ボーキサイト、硫酸カルシウム、クレイ、シリカゲル、ゼオライト、アルカリ金属酸化物、アルカリ土類金属酸化物、硫酸塩、又は金属ハロゲン化物及び過塩素酸塩とともにシールされる。カプセル化法及び乾燥法の一例としては、米国特許第6,226,890号明細書に記載された方法が挙げられる。加えて、バリア層、例えばSiOx、テフロン(登録商標)及び交互の無機/高分子層が、カプセル化分野の当業者に知られている。

[0313]

光学最適化:

本発明の有機ELデバイスは、種々のよく知られた光学効果を採用することにより、所望の場合にその特性を増強することができる。このことは、層厚を最適化することにより最大光透過率をもたらすこと、誘電ミラー構造を提供すること、反射電極を光吸収電極と交換すること、ディスプレイに防眩コーティング又は反射防止コーティングを被せること、ディスプレイに偏光媒質を被せること、又は着色フィルター、減光フィルター、又は色変換フィルターをディスプレイに被せることを含む。フィルター、偏光板及び防眩コーティ

ング又は反射防止コーティングを、具体的にはカバーに被せるか、又はカバーの一部として被せることができる。

【実施例】

[0314]

本発明及びその利点を、下記の具体例によってさらに説明する。

[0315]

低分子の合成

ポリマーを構成するために本発明において使用されるべきモノマーは、具体的に限定される必要はない。形成されるモノマーが一般式(V)及び(VI)を満たすポリマーである限り、任意のモノマーを使用することができる。典型的な合成をスキーム1~11に示す。

[0316]

【化126】

$$H_{1}CO \longrightarrow OCH_{3} \longrightarrow H_{1}CO \longrightarrow OCH_{3} \longrightarrow HO \longrightarrow OH$$

$$I \longrightarrow O$$

スキーム1

【化127】

スキーム2

【化128】

$$C_{10}H_{21} + C_{10}H_{17}$$

$$B_{1} - C_{10}H_{17}$$

$$B_{2} - C_{10}H_{17}$$

$$B_{30} - C_{2}H_{17}$$

$$C_{2}H_{17}$$

$$C_{3}H_{17}$$

$$C_{4}H_{17}$$

$$C_{5}H_{17}$$

$$C_{6}H_{17}$$

$$C_{6}H_{17}$$

$$C_{10}H_{21}$$

スキーム 3

【化129】

【化130】

スキーム5

スキーム6

【 0 3 2 1 】 【化 1 3 1 】

[0322]

【化132】

$$\begin{array}{c} CH_{3O} \longrightarrow Cc_{4}H_{13} \\ CH_{3O} \longrightarrow Cc_{$$

スキーム7

40

[0323]

【化133】

代替ルート

スキーム8

[0324]

【化134】

$$H_{3}CO$$
 $H_{3}CO$
 H_{3

【0325】 【化135】

[0326]

【化136】

スキーム11

[0327]

実施例1: 化合物1(2,5-ジメトキシ-ヘプタノフェノン)の合成

1,4-ジメトキシベンゼン(15.0g, 0.11 mol)を100mLの塩化メチレン中に溶解し、そして溶液を0℃まで冷却した。この溶液に塩化アンモニウム(17.37g, 0.13mol)を複数部分に分けて添加し、そしてその混合物を10分間にわたって撹拌した。付加的な漏斗を介して、塩化ヘプタノイル(17.75g, 0.12mol)を添加した。2時間後に反応が完了し、反応物を希HC1溶液で注意深く急冷した。有機相を分離し、希重炭酸ナトリウムで洗浄し、硫酸マグネシウム上で乾燥させた。エーテル/ヘプタン(10/90)を溶離剤として使用したシリカゲル上のカラムによって、粗生成物を精製することにより、20.52gの純粋な生成物を透明油として提供した(収率75%)。FD-MS: $250(M^+)$ 。

[0328]

実施例2: 化合物2(2.5-ジヒドロキシ-ヘプタノフェノン)の合成

化合物 $1(10.0 \, g, 0.040 \, mol)$ を $150 \, mL$ のトルエン中に溶解した。この溶液には塩化アルミニウム $(11.72 \, g, 0.088 \, mol)$ を 複数部分に分けて添加した。反応物を $80 \, C$ まで一晩にわたって加熱した。室温まで冷やした後、反応物を希 HC1 溶液中に注いだ。有機相を分離し、そして水性相を塩化メチレンで抽出した。合体された有機相を硫酸マグネシウム上で乾燥させた。ヘキサン/酢酸エチルからの再結晶化によって粗生成物を精製することにより、 $6.42 \, g$ の純粋な生成物を黄色のフラフ状固形物として提供した (収率72%)。 $^{1}HNMR(CDC1_3)\delta p$ m. $0.89(t,J=6.6 \, Hz, 3H), 1.28-1.39(m, 6H), 1.67-1.76(m, 2H), 2.91(t,J=7.5 \, Hz, 2H), 5.37(br, 1H), 6.87(d,J=8.9Hz, 1H), 7.03(dd,J_1=8.9Hz, J_2=3.0Hz, 1H), 7.22(d,J=3.0Hz,1H), 12.06(s, 1H); FD-MS: <math>222(M^+)$ 。

[0329]

実施例3:化合物3(5-ベンジルオキシ-2-ヘプタノフェノン)の合成

化合物 $2(53.60 \mathrm{g}, 0.24 \mathrm{mol})$ を $500 \mathrm{mL}$ のアセトン中に溶解した。この溶液には無水炭酸カリウム $(36.66 \mathrm{g}, 0.26 \mathrm{mol})$ を添加した。混合物を 10分間にわたって撹拌し、臭化ベンジル $(45.37 \mathrm{g}, 0.26 \mathrm{mol})$ を液滴状に添加した。反応物を一晩にわたって還流させた。室温まで冷やした後、反応物を濾過してアセトンを蒸発させた。残留物をエーテルで抽出し、そして硫酸マグネシウム上で乾燥させた。ヘプタン/酢酸エチル (98/2)を溶離剤として使用したシリカゲル上のカラムによって、粗生成物を精製した。さらにヘプタンから再結晶化させた後に、生成物を淡黄色固形物として得た $(50.12 \mathrm{g}, 収率0.67\%)$ 。 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1 1

[0330]

実施例4:化合物4の合成

10

20

30

20

30

40

50

化合物 $3(50.0 \, \mathrm{g}, 0.16 \, \mathrm{mol})$ を塩化メチレン中に溶解し、そして $0 \, \mathrm{C}$ まで冷却した。この溶液にトリエチルアミン $(19.4 \, \mathrm{g}, 0.19 \, \mathrm{mol})$ を添加し、続いてトリフラート無水物 $(54.2 \, \mathrm{g}, 0.19 \, \mathrm{mol})$ をゆっくりと添加した。反応が完了するまで、混合物を数時間にわたって室温で撹拌した。反応物を水で急冷し、塩化メチレンで抽出し、そして $\mathrm{Mg}\,\mathrm{SO}_4$ 上で乾燥させた。粗生成物を再結晶化させ、シリカゲルの短パッドに通し、そしてヘプタンから再結晶化させることにより、 $55.0 \, \mathrm{g}$ の純粋な生成物をフラフ状の白色粉末として提供した $(\mathrm{U}\,\mathrm{va}\,77\%)$ 。FD-MS: $444(\mathrm{M}^+)$ 。

[0331]

実施例5: 化合物5(2-ブロモ-6-ベンジルオキシナフタレン)の合成

6-プロモ-2-ナフトール(50.0g, 0.22mo1)を150mLのDMF中に溶解し、そして炭酸カリウム(123.92g, 0.90mo1)を添加した。混合物を10分間にわたって撹拌し、臭化ベンジル(95.84g, 0.56mo1)を添加した。反応混合物を4時間にわたって90℃で加熱し、そして水中に注いだ。粗生成物を黄色粉末として捕集し、そしてエタノールからの再結晶化により精製することにより、68.05gの純粋生成物を、煌めきを放つ白色針状物(収率97%)として提供した。 1 H NMR $(CDC1_3)$ δ ppm: 5.17(s, 2H), 7.18(d, J=2.4~Hz, 1H), $7.25(dd, J_1=8.9~Hz, J_2=2.5Hz, 1H)$, 7.35-7.52(m, 6H), 7.60(d, J=8.8~Hz, 1~H), 7.67(d, J=8.9Hz, 1H), 7.92(d, J=1.6~Hz, 1H), 1^3 C NMR $(CDC1_3)$:70.08, 107.09, 109.74, 117,15, 120.08, 127,56, 128.11, 128.42, 128.55, 128.64, 129.62, 130.09, 132.96, 136.57; FD-MS: $313(M^+)$ 8.15

[0332]

実施例6:化合物6(6-ベンジルオキシ-2-ナフタレンボロン酸)の合成

[0333]

実施例7:化合物7の合成

化合物 4(24.16g, 0.054mo1)及び化合物 6(13.60g, 0.049mo1)を 100mLのトルエン及び Na_2CO_3 の 2M溶液 (36mL, 0.072mo1)中に溶解し、そして数滴の相間移動触媒 Aquat 336を添加した。混合物を窒素で 10分間にわたって泡形成し、そして触媒テトラキス (トリフェニルホスフィン) パラジウム (0.85g, 1.5mo1%)を添加した。反応物を 105 $\mathbb C$ まで 3時間にわたって加熱した。冷却後、有機相を分離し、水性相を塩化メチレンで抽出した。合体された有機相を 10mMg 10mM

[0334]

実施例8:化合物8の合成

化合物 7(11.20g, 0.021mo1)を100mLの無水 THF中に溶解し、0 \mathbb{C} まで冷却した。窒素下で LAH(1.60g, 0.042mo1)を複数部分に分けて添加した。添加後、反応物を15分間にわたって 撹拌し、硫酸ナトリウム十水塩で注意深く急冷した。反応物を濾過し、そして沈澱した固形物を塩化メチレンで洗浄した。濾液を濃縮することにより、純粋生成物を定量的収率11.35gで提供した。 1H $NMR(CDC1_3)$ δ ppm: 0.78(t, J=7.1 Hz, 3H), <math>1.11-1.69(m, 10H), 4.11

20

30

40

50

81-4.85(m, 1H, 0H), 5.15(s, 2H), 5.21(s, 2H), 6.96(dd, J_1 =8.5 Hz, J_2 =2.6 Hz, 2H), 7.20-7.52(m, 14H), 7.65(s, 1H), 7.73(d, J_2 =2.2Hz, 1H), 7.73-7.77(m, 1H), J_3 C NMR(CDCl $_3$):14.00, 22.50, 25.81, 28.95, 31.60, 38.76, 70.07, 70.48, 106.97, 109.76, 111.76, 113.77, 119.47, 126.49, 127.55, 127.98, 128.03, 128.54, 128.59, 128.63, 128.79, 129.46, 131.37, 133.26, 133.54, 136.82, 143.92, 156.84; FD-MS: 530(M $^+$) $_{\odot}$ [0 3 3 5]

実施例9:化合物9の合成

化合物 8(14.10g, 0.028mo1)を100mLの塩化メチレン中に溶解し、0℃まで冷却した。この溶液に三フッ化ホウ素エーテル(5.9g, 0.042mo1)を添加した。20分後に、反応物を飽和型重炭酸ナトリウム溶液で注意深く急冷した。有機相を分離し、そして水性相を塩化メチレンで抽出した。合体された有機相をMgSO4上で乾燥させた。粗生成物をヘプタンから2回再結晶化させることにより、8.21gの生成物をオフホワイトの固形物として提供した(収率56%)。 1 H NMR(CDC13) 3 ppm: 0.72(t,J=7.1 Hz, 3H), 0.80-0.83(m, 2H), 1.03-1.12(m, 6H), 2.02-2.14(m, 1H), 2.17-2.27(m, 1H), 4.26-4.29(m, 1H), 5.10(s, 2H), 5.14(s, 2H), 6.96(dd,J₁=8.3 Hz, J₂=2.2Hz, 1H), 7.16-7.47(m, 14H), 7.59(d,J=8.3Hz, 1H), 7.65-7.53(m, 2H), 7.93(d,J=8.7Hz, 1H), 13 C NMR(CDC13):14.00, 22.57, 24.41, 29.52, 31.52, 33.66, 47.10, 70.03, 70.40, 108.66, 111.51, 113.19, 118.79, 119.16, 119.70, 125.36, 126.83, 127.56, 127.60, 127.94, 128.01, 128.57, 128.61, 133.82, 135.35, 136.64, 136.93, 137.15, 142.34, 149.97, 155.86, 157.93; FD-MS: 512(M+)。

[0336]

実施例10:化合物10の合成

化合物 9(8.20g, 0.016mol)を16mLのDMS0中に懸濁させ、そして10分間にわたって窒素で泡形成することにより脱ガスした。この混合物に、3滴の相間移動試薬Aquat(登録商標)336及び50%のNaOH水溶液(2.56g, 0.032mol)を窒素下で添加した。反応物は明るい橙色にすぐに変わった。次いで臭化n-ヘキシル(3.20g, 0.019mol)を液滴状に添加し、そして反応物を80℃まで加熱した。橙色は消え、そして反応物は淡黄色に、そして透明になった。20分後には、反応物を水中に注ぎ込み、エーテルで抽出した。合体された有機相を水で洗浄し、そしてMgSO4上で乾燥させた。溶剤除去後、純粋生成物を淡い褐色がかった黄色の油として得た(定量的収率)。 1 H NMR(CDCl3) δ ppm: 0.44-0.52(m, 4H), 0.76(t,J=7.1 Hz, 6H), 0.94-1.12(m, 12H), 2.13-2.23(m, 2H), 2.42-2.52(m, 2H), 5.21(s, 2H), 5.24(s, 2H), 7.05(dd,J1=8.2 Hz, J2=2.3Hz, 1H), 7.11(d,J=2.1 Hz, 1H), 7.33-7.58(m, 14H), 7.68(d,J=8.2Hz, 1H), 7.76-7.84(m, 2H), 8.16(d,J=9.2 Hz); 13 C NMR(CDCl3):13.94, 22.50, 23.50, 29.54, 31.31, 40.52, 57.22, 69.97, 70.35, 108.93, 109.42, 112.98, 118.68, 118.82, 119.41, 124.78, 125.97, 127.01, 127.62, 127.91, 127.99, 128.52, 128.58, 134.22, 135.02, 136.94, 137.01, 137.09, 143.56, 153.66, 155.55, 158.24; FD-MS: 596(M).

[0337]

実施例11:化合物11の合成

化合物 10(9.55g, 0.016mo1)を100mLの塩化メチレン中に溶解し、そして0℃まで冷却した。この溶液に、三臭化ホウ素 (6.05g, 0.024mo1)を液滴状に添加した。30分後に、反応物を飽和型重炭酸ナトリウムで急冷した。水性層を塩化メチレンで抽出し、そして合体された有機層を水で洗浄し、そして $MgSO_4$ 上で乾燥させた。粗生成物を最小量の塩化メチレンで洗浄することにより、純粋生成物 4.21gを淡褐色固形物として提供し、シリカゲル上のカラム・クロマトグラフィによって濾液を精製することにより、1.42gの生成物を提供した(総収率84%)。 1 H $NMR(CDC1_3)$ δ ppm: 0.34-0.47(m, 4H)、<math>0.69(t, J=7.0 Hz, 6H), 0.90-1.05(m, 12H), 2.05-1.05(m, 12H), 2.05-2.13(m, 2H), 2.33-2.43(m, 2H), 4.78(br, 1H), <math>4.93(br, 1H), $6.82(dd, J_1=8.1 Hz, J_2=2.3 Hz, 1H)$, 6.90(d, J=2.2 Hz, 1H), $7.15(J_1=9.0 Hz, J_2=2.3 Hz, 1H)$, 7.24(d, J=2.4 Hz, 1H), 7.57(d, J=8.0 Hz, 1H), 7.67(d, J=8.2 Hz, 1H), 7.75(d, J=8.4 Hz, 1H), 8.06(d, J=9.1 Hz, 1H); 13 C $NMR(CDC1_3)$: 13.93, 22.50, 23.51, 29.55, 31.34, 40.53, 109.45, 109.75, 111.37, 113.78, 117.60, 118.

20

30

40

50

85, 118.88, 119.61, 125.09, 126.58, 128.80, 128.80, 134.92, 143.47, 152.08, 154. 80; FD-MS: $416 \left(\text{M}^+ \right)_{\circ}$

[0338]

実施例12:化合物12の合成

化合物 $11(5.60 \mathrm{g}, 0.013 \mathrm{mol})$ 及びトリエチルアミン $(3.56 \mathrm{g}, 0.035 \mathrm{mol})$ を $80 \mathrm{mL}$ の塩化メチレン中に溶解し、そしてこの溶液を 0° Cまで冷却した。トリフラート無水物 $(9.10 \mathrm{g}, 0.032 \mathrm{mol})$ をゆっくりと添加した。30分後に、反応物を水によって急冷し、そして水性層を塩化メチレンで抽出した。合体された有機層を水で洗浄し、そして $\mathrm{MgSO_4}$ 上で乾燥させた。粗生成物をヘプタンから再結晶化させることにより、 $7.12 \mathrm{g}$ の純粋生成物を淡いクリーム色の針状物 (収率79%)として提供した。 $^{1}\mathrm{H}$ NMR(CDCl $_3$) δ ppm: 0.30-0.40(m, $4\mathrm{H}$), 0.69(t, J=6.9 Hz, $6\mathrm{H}$), 0.88-1.04(m, $12\mathrm{H}$), 2.17-2.67(m, $2\mathrm{H}$), 2.38-2.48(m, $2\mathrm{H}$), 7.31-7.34(m, $2\mathrm{H}$), 7.48(dd, J_1 =9.2 Hz, J_2 =2.5 Hz, $1\mathrm{H}$), 7.83(d, J_2 =8.2 Hz, $1\mathrm{H}$), 7.87(d, J_2 =2.5 Hz, I_2 =1), I_3 =10.15, I_3 =10.27, I_3 =10.28, I_3 =110.21, I_3 =110.23, I_3 =110.27, I_3 =110.29, I_3 =110.10, I_3 =110, I_3 =110, I_3 =110.11, I_3 =110.12, I_3 =110.21, I_3 =20.21, I_3 =20.22, I_3 =20.21, I_3 =20.22, I_3 =20.21, I_3 =20.21, I_3 =20.22, I_3 =20.23, I_3 =20.24, I_3 =20.24, I_3 =20.25

[0339]

実施例13:化合物13の合成

化合物 12(1.81g, 0.003 mol)、ビス (ネオペンチルグリコラト)二ホウ素 (1.31g, 0.006 mol)及び酢酸カリウム (1.55g, 0.016 mol)を15 mLのジオキサン中で混合した。混合物を5分間にわたって窒素で泡形成し、そして触媒ビス (ジフェニルホスフィノ)フェロセンパラジウムクロリド $(\text{Pd}(\text{dppf})_2\text{Cl}_2)$ (70 mg, 0.03 mol%)及び配位子dppf (40 mg, 0.03 mol%)を添加した。反応物を窒素下で一晩にわたって80 $\mathbb C$ で加熱した。反応物を塩化メチレン及び水で抽出し、粗生成物をシリカゲルの短カラムに通すことにより、1.31 gの純粋生成物を淡黄色の発泡体 (収率82%)を提供した。 1 H $\text{NMR}(\text{CDCl}_3)$: 0.26-0.40(m, 4H), 0.66(t, J=7.0 Hz, 6H), $0.83-0.98(\text{m}, 12\text{H}), 1.07(\text{s}, 12\text{H}), 2.21-2.31(\text{m}, 2\text{H}), 2.42-2.52(\text{m}, 2\text{H}), 3.83(\text{s}, 4\text{H}), 3.84(\text{s}, 4\text{H}), 7.75(\text{d}, \text{J=8.8} \text{Hz}, 1\text{H}), 7.83(\text{d}, \text{J=8.4} \text{Hz}, 1\text{H}), 7.85-7.92(\text{m}, 4\text{H}), 8.18(\text{d}, \text{J=8.5} \text{Hz}, 1\text{H}), 8.44(\text{s}, 1\text{H}); <math>^{13}$ $\mathbb C$ $\mathbb C$

[0340]

実施例14: 化合物14(2,6-ジヘキシルオキシナフタレン)の合成

2,6-ジヒドロキシナフタレン(30.0g, 0.19mo1)を、DMF 400mL中の炭酸カリウム(129.6g, 0.94mo1)の存在において、臭化n-ヘキシル(68.06g, 0.41mo1)と、95℃で3時間にわたって反応させた。反応物を700mLの水中に注ぎ、そして沈殿物を濾過し、水及びメタノールで洗浄し、そして乾燥させた。粗生成物をエタノールから再結晶化させることにより、54.5g(収率88%)の純粋生成物を白色結晶として提供した。 1 H NMR $(CDC1_3)$ δ ppm: 0.91(t,J=6.9~Hz, 6H), 1.32-1.40(m, 8H), 1.44-1.54(m, 4H), 1.77-2.86(m, 4H), 4.02(t,J=6.6~Hz, 4H), <math>7.06-7.12(m, 4H), 7.60(d,J=8.8~Hz, 2H); M.p. 78-79℃; FD-MS: $328(M^+)$ 。

[0341]

実施例15:化合物15の合成

化合物 $14(25.5 \mathrm{g}, 0.078 \mathrm{mol})$ を $250 \mathrm{mL}$ の塩化メチレン中に溶解し、そして0℃まで冷却した。この溶液に、塩化アルミニウム($12.7 \mathrm{g}, 0.085 \mathrm{mol}$)を複数部分に分けて添加し、そして付加的な漏斗を介して塩化ヘプタノイル($12.4 \mathrm{g}, 0.093 \mathrm{mol}$)を添加した。反応物をTLCによってモニタリングし、そして 2N HC1溶液で注意深く急冷した。反応物を塩化メチレンで抽出し、そして合体された有機相をMgSO₄上で乾燥させた。粗生成物をヘプタンから再結晶化することにより、 $25.4 \mathrm{g}(収率74\%)$ を淡黄色の粉末として提供した。 $^{1} \mathrm{H}$ NMR(CDCl $_{3}$) δ ppm: $0.77-0.85(\mathrm{m}, 9\mathrm{H})$, $1.21-1.39(\mathrm{m}, 18\mathrm{H})$, $1.61-1.76(\mathrm{m}, 6\mathrm{H})$, $2.84(\mathrm{t}, \mathrm{J}=7.4~\mathrm{Hz}, 2\mathrm{H})$, $3.91-4.00(\mathrm{m}, 4\mathrm{H})$, $6.98(\mathrm{d}, \mathrm{J}=2.4~\mathrm{Hz}, 1\mathrm{H})$; $7.04(\mathrm{dd}, \mathrm{J}_{1}=9.1~\mathrm{Hz}, \mathrm{J}_{2}=2.4~\mathrm{Hz}, 1\mathrm{H})$,

7.09 (d, J= 9.1 Hz, 1H), 7.48(d, J= 9.2 Hz, 1H), 7.61(d, J= 9.1 Hz, 1H); FD-MS: 44 $0 \, (\text{M}^+)_{\odot}$

[0342]

実施例16:化合物16の合成

化合物 $15(20.0 \mathrm{g}, 0.045 \mathrm{mol})$ を $200 \mathrm{mL}$ の塩化メチレン中に溶解し、そして0℃まで冷却した。この溶液に、三臭化ホウ素 $(34.45 \mathrm{g}(13.0 \mathrm{mL}), 0.14 \mathrm{mol})$ をゆっくりと添加した。反応物を1時間にわたって撹拌し、そして飽和型NaHC 0_3 で注意深く急冷した。反応物を塩化メチレンで抽出し、そして合体された有機相をMgS 0_4 上で乾燥させた。粗生成物をヘプタンから再結晶化することにより、 $10.2 \mathrm{g}(収率83\%)$ の純粋生成物を黄色固形物として提供した。 1 H NMR (CDCl_3) δ ppm: $0.85(\mathrm{t},\mathrm{J}=7.0~\mathrm{Hz}, 3\mathrm{H})$, $1.29-1.35(\mathrm{m}, 6\mathrm{H})$, $1.77-1.84(\mathrm{m}, 2\mathrm{H})$, $3.13(\mathrm{t},\mathrm{J}=7.4~\mathrm{Hz}, 2\mathrm{H})$, $5.04(\mathrm{br}, 1\mathrm{H})$, $7.10-7.19(\mathrm{m}, 3\mathrm{H})$, $7.72(\mathrm{d},\mathrm{J}=9.9~\mathrm{Hz}, 1\mathrm{H})$, $7.94(\mathrm{d},\mathrm{J}=9.3~\mathrm{Hz}, 1\mathrm{H})$, $12.75(\mathrm{s}, 1\mathrm{H})$; $\mathrm{FD-ES}$: $273(\mathrm{M}+1)^+$ 。

[0343]

実施例17:化合物17の合成

化合物 16(30.02g, 0.11mo1)を200mLのアセトン中に溶解した。この溶液に、炭酸カリウム (38.05g, 0.28mo1)及び触媒量の 18-クラウン-6を添加した。混合物を5分間にわたって撹拌し、そして臭化ベンジル (47.2g, 0.28mo1)を添加した。反応物を2時間にわたって還流温度まで加熱し、次いで溶剤を除去した。残留物を塩化メチレン/水で抽出した。ヘプタンを使用して再結晶化させることにより、純粋生成物を得た (40.1g, 収率80%)。 1 H NMR $(CDC1_3)$ δ ppm: $0.72(t,J=7.4~Hz, 3H), 1.12-1.19(m, 6H), 1.52-1.61(m, 2H), 2.78(t,J=7.5~Hz, 2H), 5.01(s, 2H), 5.04(s, 2H), 7.03(d,J=2.5~Hz, 1H), 7.09(d,J=9.4~Hz, 1H), 7.10(d,J=9.1~Hz, 1H); 7.18-7.34(m, 10H), 7.46(d,J=9.2~Hz, 1H), 7.56(d,J=9.1~Hz, 1H); FD-ES: <math>453(M+1)^{+}$ 。

[0344]

実施例18: 化合物18の合成

化合物 $17(16.0 \mathrm{g}, 0.035 \mathrm{mol})$ を $200 \mathrm{mL}$ のトルエン中に溶解した。この溶液に、無水臭化マグネシウム/エーテル複合体 $(9.12 \mathrm{g}, 0.035 \mathrm{mol})$ を添加した。反応物を一晩にわたって還流した。反応物を冷却し、そして水を添加した。有機相を分離し、そして水性相をエーテルで抽出した。そして合体された有機相を $\mathrm{MgSO_4}$ 上で乾燥させた。ヘプタン/エーテルを溶離剤として使用したシリカゲル上のカラム・クロマトグラフィによって、純粋生成物を得た $(11.5 \mathrm{g}, \mathrm{W} \approx 90\%)$ 。 $^1\mathrm{H} \ \mathrm{NMR}(\mathrm{CDCl_3})$ $\delta \ \mathrm{ppm}$: $0.85(\mathrm{t},\mathrm{J}=7.0\ \mathrm{Hz}, 3\mathrm{H})$, $1.29-1.35(\mathrm{m}, 6\mathrm{H})$, $1.77-1.84(\mathrm{m}, 2\mathrm{H})$, $3.08(\mathrm{t},\mathrm{J}=7.4\ \mathrm{Hz}, 2\mathrm{H})$, $5.11(\mathrm{s}, 2\mathrm{H})$, $7.93-7.46(\mathrm{m}, 8\mathrm{H})$, $7.68(\mathrm{d},\mathrm{J}=9.1\ \mathrm{Hz}, 1\mathrm{H})$, $7.92(\mathrm{d},\mathrm{J}=9.2\ \mathrm{Hz}, 1\mathrm{H})$, $12.74(\mathrm{s}, 1\mathrm{H})$; $\mathrm{FD-MS}$: $362(\mathrm{M}^+)$ 。

[0345]

実施例19:化合物19の合成

化合物 18(3.02g, 0.0083mo1)を30mLの塩化メチレン中に溶解し、そして0℃まで冷却した。この溶液に、トリエチルアミン(1.01g, 0.0099mo1)を添加し、トリフルオロメタンスルホン酸無水物(2.85, 0.01mo1)を液滴状に添加した。20分後、反応物を水によって急冷し、塩化メチレンで抽出した。短シリカゲル・カラムに通すことにより、純粋生成物を得た(4.0g, 定量的収率)。 $FD-MS: 494(M^+)$ 。

[0346]

実施例20:化合物20の合成

化合物 6(9.27g, 0.033 mol)及び化合物 19(15.0g, 0.030 mol)を 150 mLのトルエン中に溶解した。この溶液に、 $2 \text{M} \ \text{Na}_2 \text{CO}_3 (30 \text{mL}, 0.060 \text{mol})$ 及び一滴の相間移動試薬 A1iquat 336を添加した。混合物を窒素で10分間にわたって泡形成し、そして触媒 $Pd(PPh_3)_4 (0.52g, 1.5 \text{mol})$ を添加した。反応物を105 Cまで 3時間にわたって加熱し、そして冷却した。反応物を塩化メチレンで抽出し、合体された有機相を $MgSO_4$ 上で乾燥させた。粗生成物をヘプタンから再結晶化させることにより、10.34gの純粋生成物を淡黄色固形物として提供した(収率60%)。 $FD-MS: 578(M^+)$ 。

[0347]

10

20

30

実施例21:化合物21の合成

化合物 20(1.0g, 1.7mmo1)を10mLの無水THF中に溶解し、そして0Cまで冷却した。この低温溶液に、 $LiA1H_4(0.10g, 2.6mmo1)$ を添加した。反応物を20分間にわたって撹拌し、硫酸ナトリウム十水塩で急冷し、次いで濾過した。沈殿物を塩化メチレンで徹底的に洗浄した。濾液を蒸発させることにより、0.81g(収率81%)の純粋生成物を黄色固形物として提供した。 $FD-MS: 580(M^+)$ 。

[0348]

実施例22:化合物22の合成

化合物 $21(8.85g,\ 0.015mo1)$ を塩化メチレン中に溶解し、そして0℃まで冷却した。この溶液に、液滴状にトリフルオロ酢酸 $(2.47g,\ 0.022mmo1)$ を添加した。20分後、反応物を水で急冷し、そして塩化メチレンで抽出した。ヘプタンから粗生成物を再結晶化することにより、純粋生成物を得て、白色のパルプ状の固形物 $(6.36g,\ Q率75\%)$ を提供した。 1 H NMR $(CDC1_3)$ δ ppm: $0.32-0.37(m,\ 2H)$, $0.61(t,\ J=7.0\ Hz,\ 3H)$, $0.83-0.92(m,\ 4H)$, $1.26-1.38(m,\ 2H)$, $2.53-2.55(m,\ 2H)$, $4.86(br,\ 1H)$, $5.21(s,\ 4H)$, $7.25-7.53(m,\ 17H)$, $7.68(d,\ J=8.3\ Hz,\ 1H)$, $7.92(d,\ J=8.3Hz,\ 1H)$, $8.09(d,\ J=8.8\ Hz,\ 1H)$; 13 C NMR $(CDC1_3)$: 13.87, 12.42, 13.85, 13.96, 13.86, 13.96, 13.86, 13.77, 143.85, 155.95; FD -MS: 13.86

[0349]

実施例23:化合物23の合成

化合物 22(1.0g, 1.78 mmol)を 2 mLoDMSO中に懸濁させた。 5分間にわたって窒素で泡形成することにより、懸濁液を脱ガスし、そして 50%の NaOH水溶液 (0.28g, 3.56 mmol) 及び一滴の相間移動試薬 Aliquat (登録商標) 336を添加し、続いて臭化n-ヘキシル (0.35g, 2.13 mol)をゆっくりと添加した。反応物は、NaOHを添加すると明るい橙色になり、臭化n-ヘキシルを添加すると、淡黄色に変化した。反応物を80 でまで 20分間にわたって加熱し、その間に反応物は透明の淡黄色溶液になった。反応物を水中に注ぎ、エーテルで抽出し、そして乾燥させることにより、定量的な純粋生成物をオフホワイト 固形物として提供した。 $^1 \text{H}$ NMR $(CDCl_3)$ δ (ppm): 0.21-0.25 (m, 4H), 0.59 (t, J=7.0 Hz, 6H), 0.74-0.92 (m, 8H), 1.26-1.34 (m, 4H), 2.65-2.70 (m, 4H), 5.19 (2, 4H), 7.30-7.44 (m, 10H), 7.51 (d, J=7.2 Hz, 4H), 7.77 (d, J=8.3 Hz, 2H), 7.90 (d, J=8.3 Hz, 2H), 8.30 (d, J=9.2 Hz, 2H); 13 (DNMR) (DCl_3) (DCl_3)

[0350]

実施例24:化合物24の合成

化合物 23(1.0g, 1.5 mmo1) を 30 mL の塩化メチレン中に溶解し、そして0℃まで冷却した。この溶液に、液滴状に三臭化ホウ素 (0.85g, 3.4 mmo1) を添加した。30分後、反応物を飽和型重炭酸ナトリウムで急冷した。水性層を塩化メチレンで抽出し、合体された有機層を水で洗浄し、そして $MgSO_4$ 上で乾燥させた。粗生成物を最小量の塩化メチレンで洗浄することにより、0.41gの純粋生成物を淡褐色固形物として提供し、そしてエーテル/ヘプタンを溶離剤として使用したシリカゲル上のカラム・クロマトグラフィによって、濾液を精製して、0.19gの生成物を提供した(総収率74%)。 1H $NMR(CDC1_3)$ δ ppm: 0.18-0.28(m, 4H), 0.60(t,J=7.0~Hz, 6H), <math>0.74-0.98(m, 8H), 1.12-1.31(m, 4H), 2.63-2.68(m, 4H), 5.08(br, 2H), $7.20(dd,J_1=9.1~Hz, J_2=2.6~Hz, 2H)$, 7.30(d,J=8.4~Hz, 2H), 7.89(d,J=8.4~Hz, 2H); FD-MS: $466(M^+)$ 。

[0351]

実施例25:化合物25の合成

化合物 24(1.0g, 2.14mmol) を塩化メチレン中に溶解し、そして0℃まで冷却した。この溶液に、トリエチルアミン(0.54g, 5.36mmol) を添加し、続いて、トリフルオロメタンスルホン酸無水物(1.51g, 5.36mmol)をゆっくりと添加した。反応物を室温で30分間にわた

10

20

30

20

30

40

50

って撹拌し、そして水で急冷した。反応物を塩化メチレンで抽出し、そして有機相をMgSO $_4$ 上で乾燥させた。粗生成物をヘプタンから再結晶化することにより、純粋生成物1.1gを淡黄色の結晶として提供した(収率70%)。 1 H NMR(CDCl $_3$) δ ppm: 0.13-0.23(m, 4H), 0.59(t,J=7.0 Hz, 6H), 0.74-0.89(m, 12H), 2.66-2.72(m, 4H), 7.50(dd,J $_1$ = 9.3 Hz, J $_2$ = 2.5 Hz, 2H), 7.90(d,J= 2.6 Hz, 2H), 7.97(d,J= 8.4 Hz, 2H), 8.09(d,J= 8.4 Hz, 2H), 8.44(d,J= 9.4 Hz, 2H);13.74, 22.24, 23.39, 29.13, 31.04, 40.06, 60.53,119.88, 120.07, 121.18, 125.61, 128.59, 128.81, 133.98, 139.87, 145.87, 146.25, FD-MS: 730(M $^+$)。

[0352]

実施例26:化合物26の合成

化合物 22(7.0g, 12.46 mmol)を15 mLの DMS0中に懸濁させた。5分間にわたって窒素で泡形成することにより、懸濁液を脱ガスし、そして50 %の NaOH水溶液 (1.96g, 24.92 mmol)及び3滴の相間移動試薬Aliquat (登録商標) 336を添加し、続いて臭化2-エチルヘキシル (2.89g, 14.94 mmol)をゆっくりと添加した。反応物は、NaOHを添加すると明るい橙色になり、臭化2-エチルヘキシルを添加すると、淡黄色に変化した。反応物を80 ℃ まで20 分間 にわたって加熱し、その間に反応物は透明の淡黄色溶液になった。反応物を水中に注ぎ、エーテルで抽出し、そして乾燥させることにより、定量的な6.8gの純粋生成物を淡黄色の粘性油として提供した (収率92 %)。FD-MS: $674(\text{M}^+)$ 。

[0353]

実施例27:化合物27の合成

化合物 26(8.0g, 11.87 mmol)を塩化メチレン中に溶解し、そして0℃まで冷却した。この溶液に、液滴状に三臭化ホウ素 (7.47g, 29.68 mmol)を添加した。反応物を20分間にわたって撹拌し、そして飽和型 Na_2 CO $_3$ 溶液で急冷し、そして塩化メチレンで抽出した。1/1の塩化メチレン/へプタンを溶離剤として使用したシリカゲル上のカラム・クロマトグラフィによって、粗生成物を精製して、純粋生成物 3.5gを淡褐色固形物として提供した (収率60%))。 1 H $NMR(CDC1_3)$ δ ppm: 0.16-0.87(m, 26H), <math>2.62-2.67(m, 4H), $7.20(dd, J_1 = 9.1 \text{ Hz}, J_2 = 1.3 \text{ Hz}$, 2H), $7.28(d, J_1 = 2.6 \text{ Hz}, 2H)$, $7.73(d, J_1 = 8.3 \text{ Hz}, 2H)$, $7.88(dd, J_1 = 8.3 \text{ Hz}, J_2 = 1.2 \text{ Hz}$, 2H), $2.88(dd, J_1 = 9.1 \text{ Hz}$, 3.86, 3.96, 3.96, 3.28, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25, 3.25,

[0354]

実施例28: 化合物28の合成

[0355]

実施例29:化合物29の合成

500mL丸底フラスコに、200mLの塩化メチレン及びフェニルデカン(37.6g, 0.17mol)を添

20

30

40

50

加した。溶液を0Cまで冷却し、そして塩化アンモニウム(18.4g, 0.14mol)を複数部分に分けて添加し、続いて、塩化o-ブロモベンゾイル(25.2g, 0.11mol)をゆっくり添加した。反応が完了するまで、反応物を室温で撹拌し、そして0Cまで冷却し、そして2N HCL溶液で注意深く急冷した。反応物を塩化メチレンで抽出し、そして合体された有機相を $MgSO_4$ 上で乾燥させた。粗生成物をシリカゲル上のカラムによって精製することにより、41.6gの純粋生成物を透明油として提供した(収率90%)。FD-MS: m/z $401(M^+)$ 。

[0356]

実施例30: 化合物30(4-(2-エチルヘキシルオキシ)-ブロモベンゼン)の合成

1L丸底フラスコに、4-ブロモフェノール(60.0g, 0.35mo1)、炭酸カルシウム(52.7g, 0.38mo1)、臭化2-エチルヘキシル(73.7g, 0.38mo1)及びDMF 200mLを添加した。反応混合物を窒素下で一晩にわたって90℃で撹拌した。反応物を水中に注ぎ、そしてエーテルで3回抽出し、そして合体された有機相を水で3回洗浄し、そしてMgSO4上で乾燥させた。溶剤を除去したあと、粗生成物を淡褐色の液体として得た。エーテル/ヘキサン(10/90)を溶離剤として使用したシリカゲル上のカラム・クロマトグラフィによって、純粋生成物を淡黄色の液体として得た(71.2g, 収率72%)。 1 H NMR(CDCl3) δ ppm: 0.88-0.93(m, 6H, CH3), 1.27-1.46(m, 8H), 1.65-1.74(m, 1H), 3.78(d,J=5.7 Hz, 2H, 0CH2), 6.76(d,J=8.9 Hz, 2H), 7.33(d,J=8.9 Hz, 2H); 13 C NMR(CDCl3):11.08, 14.08, 23.03, 23.80, 29.05, 30.46, 39.29, 70.72, 112.42, 116.29, 132.11, 158.47; FD-MS: m/z 285 ($^{\text{M}^+}$)。

[0357]

実施例 31:化合物 31 (2,6-ビス (t-ブチルジメチルシリルオキシ)アントラキノン)の合成 2L丸底フラスコに、2,6-ジヒドロキシアントラキノン (80.0g, 0.33mo1)、イミダゾール (108.8g, 1.6mo1)、塩化 t-ブチルジメチルシリル (115.5g, 0.77mo1)及びDMF 600mLを添加した。この暗赤色混合物を3時間にわたって90℃まで加熱した。TLCが反応の完了を示した。反応物を冷まし、2Lの冷水中に注いだ。暗緑色針状沈殿物を濾過し、そして水及びメタノールで洗浄した。暗緑色結晶をエーテル中に溶解し、黒色の不溶性部分を濾過した。明黄色の濾液を濃縮し、そして粗生成物を沸騰中のメタノール中に懸濁させて濾過することにより、85.1gの純粋生成物を黄色の絹状結晶として提供した(収率54%)。 1 H NMR (CDC13) δ (ppm): 0.28(s, 12H), 1.00(s, 18H), 7.14(dd, J1=8.5 Hz, J2=2.5 Hz, 2H), 7.64(d, J=2.5 Hz, 2H), 8.17(d, J=8.5 Hz, 2H); 13 C NMR (CDC13): $^{-4}$ 1.36、25.53、117.35、125.34、127.57、129.73、135.73、161.26、182.17;M.p. 131-133℃;FD-MS:m/z 468(M⁺)

[0358]

実施例32:化合物32(2,6-ジヒドロキシ-9.10-ジ(4-(2-エチルヘキシルオキシ)フェニル)アントラセン)の合成

化合物30(18.3g, 0.064mo1)を60mLの無水THF中に溶解し、そして-78℃まで冷却した。 この溶液にn-BuLi(ヘキサン中2.5M, 25.6mL, 0.064mo1)をゆっくりと添加して、-60℃未 満の温度を維持した。添加後、橙-黄色の溶液を1時間にわたって-78℃で撹拌した。化合 物 31(10.0g, 0.021mo1)を 30mLの無水 THF中に溶解し、そして上記冷却された溶液に液滴状 に添加した。TLC分析は、3時間後に反応の完了を示した。反応物を僅かに加熱し、そして HI溶液(水中47%、39mL, 0.21mol)をゆっくりと添加することにより、反応物を急冷し、そ してTBDMS基を脱保護した。濃い褐色の反応物を10分間にわたって還流温度まで加熱し、 そして溶剤のほとんどを還元圧力下で除去した。次いで、反応混合物を塩化メチレンで3 回抽出した。合体有機相を、飽和型メタ重硫酸ナトリウム溶液、水及びブラインで洗浄し 、そしてMgSO₄上で乾燥させた。粗生成物を褐色の粘性油として得、そして15/85エーテル /ヘキサンを溶離剤として使用したシリカゲル上のカラム・クロマトグラフィによって精 製した。純粋生成物を、淡緑-黄色の固形物5.5g(収率42%)として得た。¹Η NMR(CDC1₃)δ ppm: 0.92-1.01(m, 12H, CH₃), 1.26-1.46(m, 16H), 1.77-1.86(m, 2H), 3.96(d, J=5.7Hz , 4H, 0CH₂), 4.93(s, br, 2H, 0H), 6.91(d, J=2.3 Hz, 2H), 6.95(dd, J_1 = 9.5 Hz, J_2 = 2.4 Hz, 2H), 7.09(d,J=8.6 Hz, 4H, フェニル), 7.31(d,J=8.6 Hz, 4H, フェニル), 7.6 0(d, J=9.4 Hz, 2H); $^{1.3}\text{C}$ NMR(CDCl₃): 11.17, 14.13, 23.09, 23.91, 29.13, 30.58, 39.

20

30

40

50

46, 70.62, 106.88, 114.49, 118.59, 127.33, 129.00, 129.93, 131,02, 132.21, 151.7 5, 158.72; M.p. 195-197°C; FD-MS: m/z 618 (M^+) $_{\odot}$

[0359]

実施例33:化合物33(2,6-ジ(トリフラート)-9.10-ジ(4-(2-エチルヘキシルオキシ)フェニル)アントラセン)の合成

化合物 $32(4.5 \mathrm{g},~0.007\,\mathrm{mol})$ を $50\,\mathrm{mL}$ の乾燥ピリジン中に溶解し、そして $0\,\mathrm{C}$ まで冷却した。この赤褐色溶液に、トリフラート無水物 $(6.2 \mathrm{g},~0.022\,\mathrm{mol})$ を添加した。暗緑色反応物は室温で20分間にわたって撹拌した。TLCは反応の完了を示した。反応物を水中に注ぎ、そしてエーテル $(3x200\,\mathrm{mL})$ で抽出した。合体有機相を2N HC1 $(2x200\,\mathrm{mL})$ で洗浄し、そしてMgS04上で乾燥させた。粗生成物を、 $CH_2\,Cl_2/\Lambda$ キサン (10/90)を使用したシリカゲル上のカラム・クロマトグラフィによって精製し、これにより青色蛍光の黄色の結晶生成物 $5.9\mathrm{g}$ (収率92%)を提供した。 $^1\mathrm{H}$ NMR $(CDCl_3)$ δ ppm: 0.94-1.04 (m, $12\mathrm{H}$, CH_3), 1.38-1.60 (m, $16\mathrm{H}$), 1.81-1.88 (m, $2\mathrm{H}$), 4.01 (d, $3\mathrm{H}$) 1.81-1.88 (m, $3\mathrm{H}$), $3\mathrm{Hz}$ 0 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810 1.810

[0360]

実施例34: 化合物 $34(2,6-\overline{y}(2,2-\overline{y})$ メチルトリメチレンジボロネート)-9.10- $\overline{y}(4-(2-\overline{y})$ エチルヘキシルオキシ)フェニル)アントラセン)の合成

化合物 33(4.1g, 0.005mo1)、ビス(ネオペンチルグリコラト)二ホウ素(2.3g, 0.01mo1) 及び1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン)ジクロロパラジウム(II)/ジクロロメタン錯体(0.23g, 化合物 33に対して6mo1%)、1,1'-ビス(ジフェニルホスフィノ)フェロセン(0.15g、化合物 33に対して6mo1%)、及び酢酸カリウム(2.7g, 0.028mo1)を50mLのジオキサンと混合した。混合物を10分間にわたって窒素で泡形成し、そして一晩にわたって80℃まで加熱した。反応物を冷却し、そして氷水50mLを添加した。形成された褐色沈殿物を濾過し、水及びヘキサンで洗浄した。褐色がかった黄色の固形物をエーテル中に溶解し、水(5 x 100mL)で洗浄することにより、副産物ネオペンチルグリコールを除去して3.3gの生成物を、淡い褐色がかった黄色の固形物(収率88%)として提供した。 1 H NMR(CDC13) δ ppm: 0.94-1.04(m, 24H, CH3), 1.21-1.43(m, 16H), 1.80-1.88(m, 2H), 3.72(s, 8H), 4.02(d,J=5.7Hz, 4H, 0CH2), 7.14(d,J=8.5 Hz, 4H, フェニル), 7.62-7.70(m, 4H), 8.28(s, 2H); 13 C NMR(CDC13): 11.24, 14.16, 21.95, 23.12, 23.95, 29.20, 30.64, 31.83, 39.57, 70.71, 72.24, 114.38, 126.02, 128.25, 130.20, 130.98, 131.26, 132.38, 132.49, 134.41, 134.52, 137.47, 158.59; M.p. 191-193 Υ ; FD-MS: m/z 810 (M^+)。

[0361]

ポリマーの合成

実施例35:スズキ・カップリング反応を介したポリマーの一般的な合成手順

等モルの芳香族二臭化物又はジートリフラート及び芳香族二ホウ素化合物、並びに相間移動試薬Aliquat(登録商標)336(モノマーに対して0.10当量)をトルエン中に溶解した(水に対するトルエンの比(v/v)は約3/1である)。この溶液に、2M Na $_2$ CO $_3$ 水溶液(モノマーに対して3.3当量)を添加した。反応混合物を乾燥窒素で15分間にわたって泡形成し、触媒触媒テトラキス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(モノマーに対する0.03当量)を添加した。反応物を $12\sim24$ 時間にわたって強力な還流下で加熱し、そしてブロモ基のエンドキャップのために少量のフェニルボロン酸を添加した。反応物を5時間にわたって加熱し、そしてブロモベンゼンを添加することにより、ボロネート基をエンドキャップした。反応物をさらに4時間にわたって加熱し、次いで200mLのメタノール中に注ぎ込んだ。沈澱ポリマーをメタノール、希RC1溶液で洗浄し、そして乾燥させた。ポリマーをジエチルジチオカルバミン酸塩で2回処理した。すなわちポリマーをトルエン中に溶解し、ジエチルジチオカルバミン酸上で2000年の水中2000年の水中2000年の水中で窒素下で撹拌した。トルエン層を分離し、濃縮し、そしてポリマーをメタノール中に2000円で窒素下で撹拌した。トルエン層を分離し、濃縮し、そしてポリマーをメタノール中に2000円で変素で、ポリマーを一晩にわたってソックスレー装置を用いてアセトンで抽

出することにより、オリゴマーを除去することができる。ポリマーを45℃で真空下で乾燥させた。

[0362]

ELデバイスの製作及び性能

実施例36

本発明の要件を満たすELデバイスを下記のように構成した。有機EL媒質は、本発明に記載された有機化合物から成る単層を有する。

[0363]

a) インジウム-錫-酸化物(IT0)がコーティングされたガラス基板を連続して、商業的な洗剤中で超音波処理し、脱イオン水でリンスし、トルエン蒸気中で脱脂し、そして紫外線及びオゾンに数分間にわたって暴露した。

[0364]

b) PEDOTの水溶液 (水中1.3%、H. C. Stark製のBaytron P Trial Product AI 4083)を、制御されたスピン速度でIT0上にスピンコートすることにより、500オングストロームの厚さを得た。コーティングを10分間にわたって110℃で炉内でベーキングした。

[0365]

c) 化合物のトルエン溶液 (溶剤 30 mL中の 300 mg)を、 0.2μ mテフロン(登録商標)・フィルターを通して濾過した。この溶液を次いで、制御されたスピン速度でPEDOT上にスピンコートした。膜厚は $500 \sim 700$ オングストロームであった。

[0366]

d) 有機薄膜の上側に、15オングストロームのCsF塩、続いて2000オングストロームの原子比10:1のMg及びAgから成るカソード層をデポジットした。

[0367]

上記順序によってELデバイスのデポジションを完成させた。次いでデバイスを、周囲環境に対する保護のために、乾燥グローブボックス内で気密パッケージした。

[0368]

表1は、本発明において製造されたポリマーの特徴を要約している。吸収(AB)スペクトル及びフォトルミネッセンス(PL)スペクトルをポリマーの希薄溶液及び固形薄膜から得、そしてELスペクトルをITO/PEDOT/有機化合物/CsF/Mg:Ag ELデバイスから得た。ELデバイスの製作を実施例36に示す。図2は化合物231のAB及びPLスペクトルを、そして図5は化合物206のAB及びPLスペクトルを示す。図3は化合物231のELスペクトルを、そして図6は化合物206のELスペクトルを示す。そして化合物231及び206のELデバイスの電圧-電流特性を、それぞれ図4及び図7に示す。

[0369]

20

10

【表1】

表1:実施例によるポリマーの特性

化合物	M _w ^a	PDI	T _d	Tg	UV ^b	PL c	EL	
			(°C)	(°C)	(λ _{max} nm)	$(\lambda_{\max} nm)$	(λ _{max} nm)	
165	16300	1.70	428	183	380	420 (382)	452	
167	23200	2.30	441	50	342	396 (342)	412	1
168	29200	1.97	418	86	376	420 (380)	452	
174	34400	2.01	429	138	392	424 (394)	456	
190	7000	1.85	426	137	378	424 (394)	476	
221	14100	1.80	430	190	362	410 (364)	440	
206	38200	2.15	358	NO ^T	392	432 (394)	468	
231	39300	2.62	405	123	428	522 (430)	520	
215	13100	1.65	433	140	388	426 (384)	456	2
133	29000	2.27	420	72	358	422 (360)	468	
280	976	1.21	278	70	NA ^d	NA	NA	
282	4920	1.57	454	182	394 ^e	448 (396) °	488	
278	2550	1.35	449	128	380 €	428 (382) °	NA	
284	1860	1.28	236	54	368 °	430 (370) °	NA	
198	7990	2.52	436	174	384	448 (386)	452	
199	6890	1.50	421	NO	384	424 (386)	NA	3
201	14100	1.68	405	76	388	450 (378)	460	
273	5190	1.38	409	175	364	442 (366)	468	

[0370]

a ポリスチレン標準を使用してTHF中でサイズ排除クロマトグラフィによって測定された、重量平均分子量。b ソリッドステート薄膜として。c ソリッドステート薄膜として、括 弧内の数値は励起波長である。d 入手不能。e トルエン溶液中。f 観察されず。

【図面の簡単な説明】

[0371]

【図1】図1は、ELデバイスの基本構造を示す断面図である。

【図 2 】図 2は、化合物 231の吸収 (AB) スペクトル及びフォトルミネセンス (PL) スペクトルを示す図である。

【図3】図3は、化合物231から製作されたELデバイスのELスペクトルを示す図である。

【図4】図4は、化合物231から製作されたELデバイスの電圧-電流密度及び輝度の特性を示す図である。

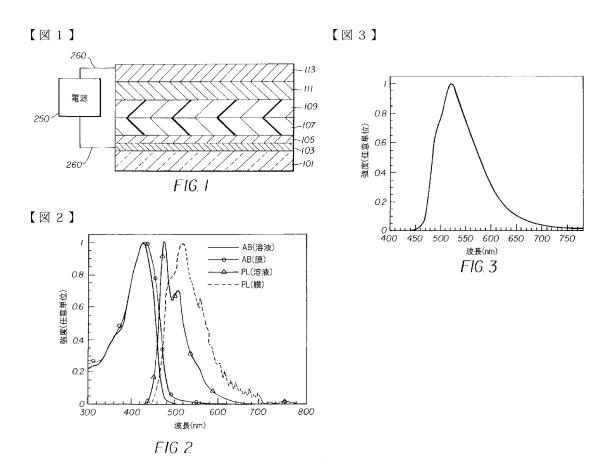
【図 5 】図 5は、化合物 206の吸収(AB)スペクトル及びフォトルミネセンス(PL)スペクトルを示す図である。

10

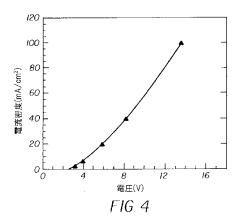
20

30

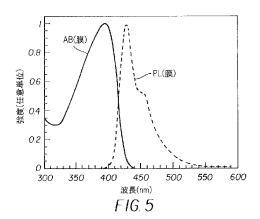
【図 6 】図 6 は、化合物 206から製作された EL デバイスの EL スペクトルを示す図である。 【図 7 】図 7 は、化合物 206から製作された EL デバイスの電圧 - 電流密度及び輝度の特性を示す図である。



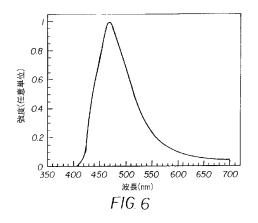
【図4】



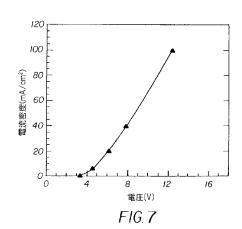
【図5】



【図6】



【図7】



【国際調査報告】

	INTERNATIONAL SEARCH REP	tional Application No PCT/US 03/40731	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·					
A. CLASSI IPC 7	FICATION OF SUBJECT MATTER C09K11/06 H05B33/14 H01L51/2 C07C43/215 C08G61/10 C08G61/1	20 H01L51/	/30 C07C211/54					
— <u> </u>	According to Internalional Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC							
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 C09K H05B H01L C07C C08G Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched								
l	Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used) CHEM ABS Data, WPI Data, EPO-Internal							
C. DOCUMI	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			<u>.</u> .				
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the rel	evant passages	Helevant	to daim No.				
Х	WO 99/54385 A (DOW CHEMICAL CO) 28 October 1999 (1999-10-28) * pages 4-5, Examples, claims *		1-7					
X	WO 01/81294 A (SONY INT EUROP GME TZENKA (DE); YASUDA AKIO (DE); KM 1 November 2001 (2001-11-01) * pages 10-11, Examples, claims *	1-7						
Х	WO 97/33323 A (UNIAX CORP) 12 September 1997 (1997-09-12) * Examples, claims, figures 1A-16	ì *	1~7					
Х	WO 01/96454 A (MAXDEM INC ;MARROC MATTHEW L III (US); MOTAMEDI FARS (US)) 20 December 2001 (2001–12–2 * page23, Example 4, page 24, Exa page 29, Example 25, claims *	SHAD J 20)	1-7					
		-/						
X Furti	X Further documents are listed in the continuation of box C. X Patent family members are listed in annex.							
*Special categories of cited documents: 'A' document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance interest of the art which is not considered to be of particular relevance. 'E' earlier document but published on or after the international filing date 'L' document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cated to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) 'O' document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means. 'P' document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed. 'I' alter document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention or annot be considered novel or cannot be considered to invention annot be considered to invention and the priority date claimed. 'Y' document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered to invention in invention being obvious to a person skilled in the art. '&' document member of the same palent tamity								
Date of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report								
	3 May 2004	25/05/2	2004					
Name and r	nailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016	Authorized officer	С					

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2004)

| stional Application No | PUT/US 03/40731

		107/63 03/40/31
.(Continua	ation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT	
ategory °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
×	EP 1 138 746 A (SUMITOMO CHEMICAL CO) 4 October 2001 (2001-10-04) * page 10, chemical formula 41, page 30, Example 6, page 31, Example 7, claims *	1-7
°, X	WO 03/051092 A (CANON KK ;CHEN JIAN PING (US)) 19 June 2003 (2003-06-19) * page 13, Example 8, page 14, Example 10, claims *	1-7

Form PCT/ISA/210 (continuation of second sheet) (January 2004)

International Application No. PCT/ US 03 /40731

FURTHER INFORMATION CONTINUED FROM PCT/ISA/ 210

Continuation of Box I.2

The initial phase of the search revealed a very large number of documents relevant to the issue of novelty. So many documents were retrieved that it is impossible to determine which parts of the claims may be said to define subject-matter for which protection might legitimately be sought (Article 6 PCT). For these reasons, a meaningful search over the whole breadth of the claims is impossible. Consequently, the search has been restricted to compounds (I), (II) and (III) of claim 1, wherein X1, X2, X3 and X4 are CH, in combination with the use in an electroluminescent device.

The applicant's attention is drawn to the fact that claims, or parts of claims, relating to inventions in respect of which no international search report has been established need not be the subject of an international preliminary examination (Rule 66.1(e) PCT). The applicant is advised that the EPO policy when acting as an International Preliminary Examining Authority is normally not to carry out a preliminary examination on matter which has not been searched. This is the case irrespective of whether or not the claims are amended following receipt of the search report or during any Chapter II procedure.

ternational application No. PCT/US 03/40731

Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)
This international Search Report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:
Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. X Claims Nos.:
Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).
Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)
This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:
As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this International Search Report covers all searchable claims.
As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international Search Report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
No required additional search (see were timely paid by the applicant. Consequently, this International Search Report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:
Remark on Protest The additional search fees were accompanied by the applicant's protest. No protest accompanied the payment of additional search fees.

Form PCT/ISA/210 (continuation of first sheet (1)) (July 1998)

Information on patent family members

attorial Application No PCT/US 03/40731

Patent document cited in search report		Publication date		Patent family member(s)	Publication date
WO 9954385	A	28-10-19 9 9	US	6309763 B1	30-10-2001
			CA	2294485 Al	28 - 10-1 9 99
			CN	1263542 T	16-08-2000
			DΕ	69908522 D1	10-07-2003
			DΕ	69908522 T2	15-04-2004
			ΕP	0988337 A1	29-03-2000
			JP	2002506481 T	26-02-2002
			MO	9954385 A1	28-10-1999
			US 	2001026878 A1	04 - 10-2001
WO 0181294	Α	01-11-2001	€P	1149827 A1	31-10-2001
			ΑU	6221801 A	07-11-2001
			CN	1366516 T	28-08-2002
			DE	60007080 Dl	22-01-2004
			MO	0181294 Al	01-11-2001
			J₽	2003531186 T	21-10-2003
			US	2002173617 A1	21~11-2002
WO 9733323	A	12-09-1997	DE	69724107 D1	18-09-2003
			ĘΡ	0885461 A1	23-12-1998
			J₽	2000506916 T	06-06-2000
			WO	9733323 Al	12-09-1997
			US	5900327 A	04-05-1999
WO 0196454	A	20-12-2001	AU	6979001 A	24-12-2001
			CN	1441826 T	10-09-2003
			ΕP	1297060 A1	02-04-2003
			JP	2004503640 T	05-02-2004
			WO	0196454 A1	20-12-2001
			US	2002028347 A1	07-03-2002
EP 1138746	A	04-10-2001	EP	1138746 A1	04-10-2001
			JР	2001342459 A	14-12-2001
			US	2002027623 A1	07-03-2002
WO 03051092	 А	19-06-2003	US	2003143422 A1	31-07-2003
			WO	03051092 A1	19-06-2003

Form FCT//SA/210 (patent family granex.) (Jenuary 2004)

フロントページの続き

(51) Int.C1.		FΙ		テーマコード(参考)
C O 7 C 43/21	(2006.01)	C O 9 K 11/06	6 5 5	
C O 7 C 43/275	(2006.01)	C O 9 K 11/06	6 4 0	
C O 7 D 333/08	(2006.01)	C O 9 K 11/06	6 5 0	
C O 8 G 61/00	(2006.01)	C O 9 K 11/06	6 4 5	
HO1L 51/50	(2006.01)	C O 9 K 11/06	680	
H O 5 B 33/12	(2006.01)	C O 7 C 211/54		
		C O 7 C 211/58		
		C O 7 C 211/61		
		C O 7 C 43/21		
		C O 7 C 43/275		
		C O 7 D 333/08		
		C O 8 G 61/00		
		H O 5 B 33/14	В	
		H 0 5 B 33/12	С	

(72)発明者 チェン,シーイン

アメリカ合衆国, ニューヨーク 14580, ウェブスター, リンドセイ サークル 821

(72)発明者 バエス, キャサリン ミシェル

アメリカ合衆国, ニューヨーク 14610, ロチェスター, ファラデイ ストリート 42

(72)発明者 ベネット, グレース エー

アメリカ合衆国, ニューヨーク 14546, スコッツビル, ノース ロード 1430

Fターム(参考) 3K007 AB03 AB04 AB18 DA06 DB03 FA01

4H006 AA01 AA03 AB92 GP01 GP03 GP06

4J032 CA12 CB01 CD02